

THÈSES

présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean TOUSSET

Ingénieur-Chimiste F. C. S. L.

1^{re} Thèse :

LES SPECTRES BÉTA DE FAIBLE ENERGIE
DE QUELQUES ÉLÉMENTS LOURDS

2^{ème} Thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Soutenue le 7 Octobre 1961 devant la Commission d'Examen :

MM. A. MOUSSA Président

A. SARAZIN

R. PÂRIS

J. TEILLAC

} Membres du Jury

Invité

THÈSES

présentées

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Jean TOUSSET

Ingénieur-Chimiste F. C. S. L.

1^{re} Thèse :

**LES SPECTRES BÉTA DE FAIBLE ENERGIE
DE QUELQUES ÉLÉMENTS LOURDS**

2^{ème} Thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Soutenue le 7 Octobre 1961 devant la Commission d'Examen :

MM. A. MOUSSA Président

A. SARAZIN }
R. PÂRIS } Membres du Jury

J. TEILLAC Invité

UNIVERSITÉ DE LYON - FACULTÉ DES SCIENCES

Doyens honoraires

MM. LONGCHAMBON
DOUIN
MOUSSA

Professeurs Honoraires

MM. LOCQUIN
de LARAMBERGUE
DOEUVRE

MM. SOLLAUD
MENTZER
MOUSSA

Doyen

M. GAUTHIER H.

Assesseur

M. BRACONNIER

Professeurs

MM. LONGCHAMBON	Minéralogie	MM. DUFAY J.	Astronomie
DEJARDIN	Physique générale	NIGON	Zoologie expérimentale
DOUIN	Botanique	GAUTHIER H.	Géologie
EYRAUD H.	Calcul Différentiel et Intégral	VIRET	Géologie
COURTY	Chimie-Physique	WAUTIER	Zoologie
PRETTRE	Chimie Industrielle	CHOPIN	Chimie biologique
KUHNER	Microbiologie et Mycologie	CUEILLERON	Chimie
MALECCOT	Mécanique rationnelle et appliquée	BRACONNIER	Mathématiques
PÂRIS	Chimie Minérale	EYRAUD Ch.	Chimie Physique appliquée
AUMERAS	Chimie	JAFFARD	Méthodes Mathématiques de la Physique
COLONGE	Chimie Organique	SARAZIN	Physique nucléaire
FLANDRIN	Géologie Appliquée	BOIDIN	Botanique
JANIN	Physique expérimentale	PERES	Physiologie
BERNARD	Physique industrielle		

Professeurs sans chaire

MM. BOUTILLIER	Minéralogie	MM. GAUME	Physique
MESNARD	Physique	MERLIN	Chimie M, P, C.
DREUX	Chimie organique	PACHECO	Chimie Biologique
GRANDMONTAGNE	Physique	PAVANS	
LAFOUCRIERE	Physique nucléaire	de CECCATTY	Zoologie
TEICHNER	Chimie Industrielle	PHILBERT	Physique nucléaire

Maîtres de Conférences

MM. DEPRAZ	Physique nucléaire	MM. ASCH	Physique
FERON	Mathématiques	DUFAY M.	Physique
BERSILLON	Physiologie végétal S, P, C, N.	GINET	Zoologie
DAVID L.	Géologie	MAURY	Mathématiques
GAUTHIER J.	Chimie	MICHEL	Minéralogie
LAFOURGUE	Physique	Mme ERICSON	Physique générale
LEGAY	Zoologie expérimentale S, P, C, N.	GEVIN	Géologie
UZAN	Physique S, P, C, N.	PONASSE	Mathématiques
CHENEVOY	Géologie appliquée	LEFEVRE	Mathématiques
Mlle MAITROT	Physique	d'INCAN	Physique
CHANEL	Psychophysiologie		

Maîtres de Conférences adjoints

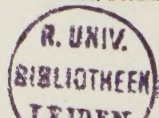
M. PIERRON	Chimie	M. LEMONDE	Physique
------------	--------	------------	----------

Secrétaire Principal honoraire

M. ROUX

Secrétaire Principal

M. BURNET



A Monsieur le Professeur A. MOUSSA

A mes Parents

A ma Femme



Digitized by the Internet Archive
in 2026

Les travaux faisant l'objet de cette thèse ont été accomplis au laboratoire de Chimie Nucléaire de Monsieur le Professeur A. MOUSSA, qu'il dirigeait alors à l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon.

Je tiens à lui exprimer ma plus vive reconnaissance, tant pour la formation de chercheur qu'il s'est efforcé de me donner que pour la somme de conseils, d'idées, qu'il n'a cessé de me prodiguer. Qu'il me soit permis d'exprimer le vœu que, malgré notre éloignement, se continue notre collaboration pour moi si profitable.

Je voudrais également remercier Monsieur le Professeur A. SARAZIN, Directeur de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon, qui a bien voulu me faire l'honneur de participer au jury.

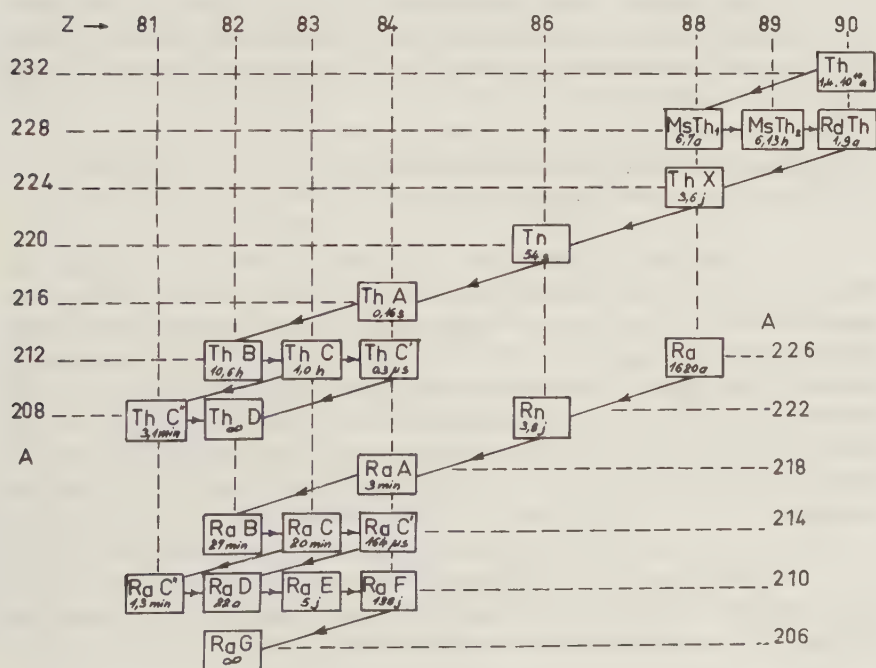
J'adresse un remerciement tout spécial à Monsieur le Professeur R. PÂRIS, qui a daigné s'intéresser à mon travail et m'accepter dans son service.

Que Monsieur le Professeur J. TELLAC, Directeur de l'Institut du Radium, qui m'accorde l'honneur et le privilège de sa présence dans ce jury, reçoive l'expression de ma plus profonde et respectueuse reconnaissance.

J'exprime enfin mon amicale gratitude à mes collègues de laboratoire et collaborateurs techniques, je pense tout particulièrement à Mademoiselle A. JUILLARD et à Monsieur J. MARTIN.

INTRODUCTION

Dans les trois séries radio-actives naturelles de l'uranium, du thorium et de l'actinium, il existe trois éléments dont la désintégration avec émission d'électrons nucléaires fut supposée par les lois de déplacement de Soddy avant que l'on puisse fournir quelque preuve de cette émission. Ces corps sont : le Radium D, le Mésothorium 1 et l'actinium 227. Le cas de ce dernier, que nous n'avons pu étudier sera mis à part ; nous représentons ci-dessous le schéma de filiation des deux premières familles (à partir du ^{226}Ra seulement pour l'uranium).



Le RaD (^{210}Pb), isotope du plomb ($Z = 82$), de période 22 ans, a comme descendant immédiat le RaE (^{210}Bi) ($Z = 83$), lui-même émetteur β énergétique produisant du Polonium (^{210}Po) ($Z = 84$). De même type se trouve être la séquence isobarique du Ms Th₁ ($^{228}\text{Ra} \rightarrow_{88}^{228} \text{Ac} \rightarrow_{89}^{228} \text{Th}$). On a cru baser sur cette analogie que nous préciserons plus loin, des ressemblances de structure conduisant à des schémas de désintégration voisins. (1).

Ces deux corps sont connus depuis longtemps déjà : le RaD impose sa longue période à la décroissance de l'activité des vieilles ampoules de radon et le Ms Th₁ a reçu des applications médicales grâce à la forte émission γ de ses descendants. Mais malgré les nombreux travaux qu'ils ont suscités, leurs schémas de désintégration sont loin d'être établis dans leur détail. De plus, ces deux désintégrations du RaD et du Ms Th₁ donnent naissance aux deux noyaux impair-impairs, le RaE et le Ms Th₂, dont les niveaux excités fort mal connus, ne peuvent guère s'étudier que lors de ce processus. Rappelons, en effet, que les niveaux excités sont accessibles :

1) après désintégration β à condition que l'énergie libérée soit suffisante. Ici, à cause de la faiblesse certaine de l'émission, nous ne pourrions éventuellement déceler que les premiers niveaux.

2) après désintégration α . Ce n'est pas le cas pour le Ms Th₂ car le parent ^{232}Pa est impair-impair et l'émission β est prépondérante. Pour le RaE, le parent ^{214}At est mal connu.

3) par réactions nucléaires fournissant le noyau cherché avec émission de particules chargées ou non formant des groupes que l'on peut analyser. Le travail reste à faire dans cette région, bien que nous signalerons tout à l'heure la réaction de capture ^{209}Bi (n, γ).

4) par excitation coulombienne. Ceci est à peu près impossible ici vu la faible période du Ms Th₂ ou du RaE.

Ceci explique le petit nombre de renseignements que nous possédons sur les états excités de ces noyaux impair-impairs, et d'une façon générale sur tous les noyaux impair-impairs. En effet, si on examine l'ensemble de la classification, on trouve un grand nombre de ces noyaux compris entre deux isobares stables et sur les niveaux excités desquels on n'a pas de renseignements. C'est seulement dans la région des valeurs moyennes de A correspondant aux produits de fission qu'on trouve des chaînes isobariques assez longues pour que les schémas de désintégrations β des noyaux pair-pairs de la chaîne donnent des renseignements sur les niveaux excités des noyaux impair-impairs qu'ils produisent.

Nous nous sommes donc proposés dans ce travail l'étude des schémas de désintégrations du RaD et du Ms Th₁, disposant au laboratoire de Monsieur le Professeur A. MOUSSA, d'un appareillage spécialement conçu pour l'analyse

d'émissions électroniques de très basse énergie (spectromètre magnétique à double focalisation muni de dispositifs d'accélération, avec fenêtre de compteur G.M. dont l'épaisseur ne dépasse pas $10 \mu\text{g/cm}^2$). Nous avons, de plus, déterminé l'intensité et la nature de certaines transitions γ consécutives à la désintégration β du Ms Th_2 . Les spectres Auger L de réarrangement des noyaux du RaE et du Rd Th furent également étudiés et nous avons calculé les rendements Auger L et Coster-Kronig.

Pour situer l'état actuel des recherches, nous résumons brièvement l'ensemble des travaux qui furent consacrés à ces noyaux.

a) RaD : Jusqu'en 1939, le schéma de désintégration de RaD fut considéré comme simple : un seul spectre β alimentant un niveau excité, situé à 46,7 KeV d'après les mesures de Curtiss (2) faites en 1926. L'énergie maximum du spectre β est estimée à 15 KeV par Richardson et Leigh-Smith (3) (1937) grâce à une étude des électrons à la chambre de Wilson et, un peu plus tard, à 25,5 KeV par Lee et Libby (4) (1939) par des mesures de déviations magnétiques. Quant à l'intensité des électrons secondaires, ainsi qu'on appelait alors les électrons de conversion, les mesures sont des plus contradictoires, sans conclusions possibles, variant de 15 à 85 % suivant les auteurs (Kikuchi) (5) (1927), Stahel (6) (1931), Lee et Libby (4) (1939), Quang, Surugue et Tsien (7) (1943).

Mais bientôt de nouveaux travaux remettent tout en question. La technique de sources et la précision des méthodes s'améliorent, on s'aperçoit qu'effectivement la somme des électrons de conversion et des gammas non convertis correspondant au niveau de 46,7 KeV ne représente pas la totalité des désintégrations (77,5 % d'après Granberg (8) (1950) et de nombreux gammas supplémentaires sont découverts, de 43, 37, 32, 23,3 et 7-8 KeV (Tsien, 1943-1944) (9) (10), Frilley (11) (1944), Tsien et Marty, 1945 (12), Feather 1949 (13). Falk-Vairant, Teillac et Victor (14), étudiant les coïncidences entre les électrons, montrent que 90 % des électrons du spectre doivent avoir une énergie inférieure à 8 KeV. Des schémas assez complexes sont proposés (Butt et Brodie (1951) (15), R.C. Baunerman et S.C. Curran, 1952 (16).

Puis - et c'est la période actuelle - l'existence de ces nombreux gammas en cascade est remise en cause. G.T. Ewans et Ross (1952) (17), en utilisant un spectromètre à cristal courbé, ne trouvent aucune autre raie gamma que celle de 46,7 KeV dans la limite de leurs observations, révisant d'ailleurs la valeur admise pour l'énergie du niveau et donnant $46,52 \pm 0,02$ KeV. Wu (1953) (18) ensuite confirme ces conclusions et interprète le γ de 7-8 KeV comme étant une radiation de fluorescence du nickel ou du cuivre des compteurs proportionnels utilisés ou des supports de source, le γ de 23 KeV comme étant le résultat d'un effet d'empilement des radiations $L\alpha$ et $L\beta$ dans de tels compteurs. Elle fixe de plus une limite supérieure de 0,5 % à l'intensité globale des raies de conversion des γ de 42, 37 et 31 KeV par spectrométrie magnétique.

Le schéma de désintégration se simplifie donc à nouveau, mais avec cette fois la conviction qu'il y a de 5 à 20 % des désintégrations qui doivent passer par une transition directe difficile à mettre en évidence et qui fera l'objet d'une partie de notre étude.

Une seule donnée a peu varié au cours des années, c'est le nombre de gammas de 46,5 KeV non convertis émis pour 100 désintégrations, nous donnons ci-dessous, le tableau des différents résultats. La valeur exceptionnellement forte de Mme Wu résulterait, d'après une remarque de Damon et Edwards, de l'emploi d'un rendement de fluorescence trop élevé attribué à Kinsey.

> 4	Gray (1932) (19)	3,6 von Droste (1933) (21)
3,1	Bramson (1930) (20)	7 ± 2 Wu et al. (1953) (18)
$3,8 \pm 0,6$	Damon et Edwards (1954) (22)	

Plusieurs études des électrons Auger L sont en outre effectuées, par Y. Kobayashi (1953) (23), Bashilov (1953) (24), après un essai peu concluant de Butt et Brodie (15).

Un dernier fait doit être signalé. La réaction de capture $^{209}\text{Bi} (n, \gamma)$ ^{210}Bi donne naissance, en plus du RaE, à une activité de vie longue ($3 \cdot 10^6$ années) décroissant pour 99,6 % par émission α . Ce corps, bien identifié comme étant ^{210}Bi est donc un isomère du RaE, qui avait été trouvé lui aussi producteur de ^{206}Tl dans une proportion de $1,7 \cdot 10^{-6}$ à l'équilibre (25) (26). Cet isomère qu'on a appelé ^{210}Bi "long" correspond-il à un niveau excité du RaE, ou inversement ? Les études récentes de R. J. Walen et G. Bastin-Scoffier (27) ne permettent pas de conclure.

b) Ms Th₁ : Découvert par O. Hahn, le mésothorium 1 accompagne son isotope, le radium 226, dans les minerais contenant de l'uranium et du thorium. Le rayonnement β et γ qu'il paraissait émettre fut vite identifié comme appartenant à son descendant immédiat, isotope de l'actinium, le mésothorium 2, qu'on sépare facilement en solution en le précipitant par l'ammoniaque. Les premiers travaux effectués sur le Ms Th₁ ne permettent pas de mettre en évidence aucun rayonnement qui lui soit attribuable. Puis, Lee et Libby (4) (1939) concluent à l'existence d'une émission électronique jusque vers 53 KeV, par des mesures d'absorption et de déviations magnétiques. Cette question est reprise, dix ans plus tard, par le groupe français de Mlle Perey, J. Teillac, M. Lecoin et M. Riou. Au moyen de la chambre de Wilson, ils obtiennent une répartition spectrale de 15 électrons pour 100 désintégrations entre 1,5 et 18 KeV, semblant indiquer la présence de raies à 3, 7 et peut-être 12 KeV ; 85 % des électrons de désintégrations du Ms Th₁, s'ils existent, auraient une énergie inférieure à 1,5 KeV (28). Ce résultat est ensuite confirmé (29) en détectant par une méthode d'absorption, sur 100 désintégrations, $4 \pm 1,5$ photons d'environ 15 KeV attribuables à un rayonnement XL suivant la conversion. Mais le schéma de

désintégration définitif qui fait alors apparaître un γ de l'ordre de 30 KeV alimenté dans 15 % des désintégrations est en contradiction avec la faiblesse de l'émission électronique. Le phénomène de création e est alors mis en avant, puis abandonné.

En 1958, G. Goetze et E. Huster (30) tracent un diagramme de Kurie au compteur proportionnel, concluant à la présence d'un seul spectre β simple de forme permise et d'énergie maximum W_0 voisine de 55 KeV, alimentant directement le niveau fondamental. Ces auteurs se retrouvent en accord avec Lee et Libby, sans expliquer du tout les résultats très opposés du groupe français.



CHAPITRE I

GÉNÉRALITÉS

A) CONSIDERATIONS ENERGETIQUES SUR LA STABILITE DES ISOBARES :

Si l'on trace le graphique $N = f(Z)$, représentant le nombre des neutrons en fonction du nombre des protons pour tous les éléments connus, on sait que les points représentatifs se groupent le long d'une ligne assez étroite partant de l'origine et s'écartant peu à peu vers le haut de la droite $N = Z$. Dans un tel diagramme, les isobares se trouvent sur les diagonales $N + Z = A$. On constate que si A est impair, il n'y a, en général qu'un noyau stable, tandis que si A est pair, il peut y en avoir deux ou même trois. Ceci peut se mettre assez facilement en évidence en prenant un troisième axe de coordonnées rectangulaire, représentant les masses atomiques M des noyaux (Ou aussi, si l'on veut, leur énergie de liaison W_1). Les points représentatifs, dans les deux hypothèses, se répartissent alors sur une surface offrant l'aspect d'une vallée dont les sections par des plans $A = c^{te}$ ont une forme caractéristique. Si A est impair, les points correspondants sont sur une parabole unique, le noyau qui se trouve le plus près du fond de la vallée étant le plus stable, ses voisins de Z plus élevé se désintégrant par β^+ ou capture, ceux de Z moins élevé par émission β^- .

Pour A pair, et c'est pour notre étude le cas intéressant, les isobares de Z pair et ceux de Z impair sont sur deux paraboles différentes, celle correspondant aux Z impairs étant au-dessus, le décalage entre les deux représentant un aspect de ce que nous appelons l'énergie de paire, caractérisant le fait que des nucléons identiques en nombre pair sont plus fortement liés que s'ils sont en nombre impair. La faiblesse de l'émission β à partir d'un noyau de Z pair est immédiatement apparente. (cf. figure 1).

Ces considérations purement expérimentales sont assez bien interprétées par la formule semi-empirique de Von Weizsäcker. Cette formule, dont la validité est sensiblement confirmée par les études expérimentales sur les schémas et les énergies de désintégrations, a reçu des développements plus théoriques dans le modèle statistique du noyau dit de la goutte liquide. Nous allons en préciser l'application dans le cas de la chaîne du $Ms\ Th_1$. Son usage, pour la série $RaD \rightarrow RaE \rightarrow RaF$, sera probablement délicat, à cause de leurs nombres de nucléons, trop voisins des nombres magiques (82 et 126).

Soit le processus de désintégration $\beta^- : (A, Z) \rightarrow (A, Z + 1) + \beta^-$. L'énergie disponible ΔE dans cette désintégration peut sensiblement se représenter par la relation :

$\Delta E = M(A, Z) - M(A, Z + 1)$, les masses atomiques étant exprimées en unités d'énergie. Or si W_1 représente l'énergie de liaison du noyau (Ou de l'atome, si l'on néglige les énergies de liaison électronique), de telles masses peuvent s'écrire, en notation classique :

$$M(A, Z) = Z M_H + N M_n - W_1.$$

Dans le langage statistique du modèle de la goutte liquide, dont nous rappelons les hypothèses fondamentales :

a) la matière nucléaire constitue un fluide incompressible.

b) les forces nucléaires sont à court rayon d'action et indépendantes du spin et de la charge, cette énergie de liaison W_1 peut s'exprimer comme une suite de termes, conduisant, dès 1935, Von Weizsäcker à proposer la formule suivante donnant la masse atomique exacte d'un nuclide (A, Z) :

$$M(A, Z) = Z M_H + N M_n - u_v A + u_s A^{2/3} + u_c Z(Z-1)A^{-1/3} + u_a \frac{(A-2Z)^2}{A} + \delta$$

dans laquelle $u_v A$ représente l'énergie de volume et $u_s A^{2/3}$ le terme correctif de surface, ces deux expressions traduisant l'analogie noyau-goutte liquide. Le terme $u_c Z(Z-1)A^{-1/3}$ désigne l'énergie coulombienne de répulsion des protons.

La quantification des niveaux d'énergie des nucléons dans le noyau, satisfaisant au principe d'exclusion de Pauli, conduit à montrer que les $N-Z$ neutrons en excès ont une énergie de liaison moyenne plus faible que les $2Z$ autres nucléons. Ce fait se traduit par un déficit supplémentaire de l'énergie de liaison totale, correspondant au terme de symétrie (ou d'asymétrie) $u_a \frac{(A-2Z)^2}{A}$

Enfin le dernier terme δ caractérise l'énergie dite de paires, illustrant la tendance qu'ont les nucléons à former des paires sur un même niveau. Son expression est plus délicate et se trouve habituellement écrite sous les trois formes suivantes :

$$\delta = \frac{u_p}{A} - \frac{u'_p}{A^{3/4}} \quad \text{ou} \quad \frac{u''_p}{A^{1/2}}.$$

Le signe + dans la formule s'applique aux noyaux impair-impairs, le signe - aux noyaux pair-pairs. (Par convention, $\delta = 0$ pour tous les noyaux de A impair).

Pour 1 série d'isobares, cette formule peut s'écrire :

$M(A, Z) = K + aZ + bZ^2 + \delta$. C'est l'équation des paraboles observées précédemment dans la représentation des isobares.

D'une série d'isobares, on peut déterminer immédiatement, connaissant les constantes a et b , celui qui est le plus stable ; sa valeur de Z sera l'entier le plus proche du Z_0 rendant minimum l'équation précédente, soit $Z_0 = -\frac{a}{2b}$.

Des valeurs moyennes des diverses constantes sont données par R. D Evans (31) en réunissant les travaux effectués sur ce sujet jusqu'en 1955. Il donne :

$$u_V = 14,1 \text{ Mev} ; u_S = 13 \text{ Mev} ; u_C = 0,595 \text{ Mev} ; u_a = 19,0 \pm 0,9 \text{ Mev}.$$

$$u_P = 132 \text{ (} u'_P = 33,5 \text{)}$$

Nous pouvons préciser ces données pour la série du $MsTh_1$ ($A = 228$). Nous obtenons $a = -77 \text{ Mev}$ et $b = 0,430 \text{ Mev}$, soit $Z_0 = 89,5$. Les deux formes en A^{-1} et $A^{-3/4}$ avancées alors pour l'expression de δ conduisent à des résultats voisins, environ $0,58 \text{ Mev}$. Mais si nous voulons en déduire les deux énergies de transitions successives $MsTh_1 - MsTh_2$ et $MsTh_2 - RdTh$, nous sommes conduits à un résultat incohérent dans le premier cas (énergie négative) et dans le second cas à une énergie trop faible ($\approx 1,2 \text{ Mev}$).

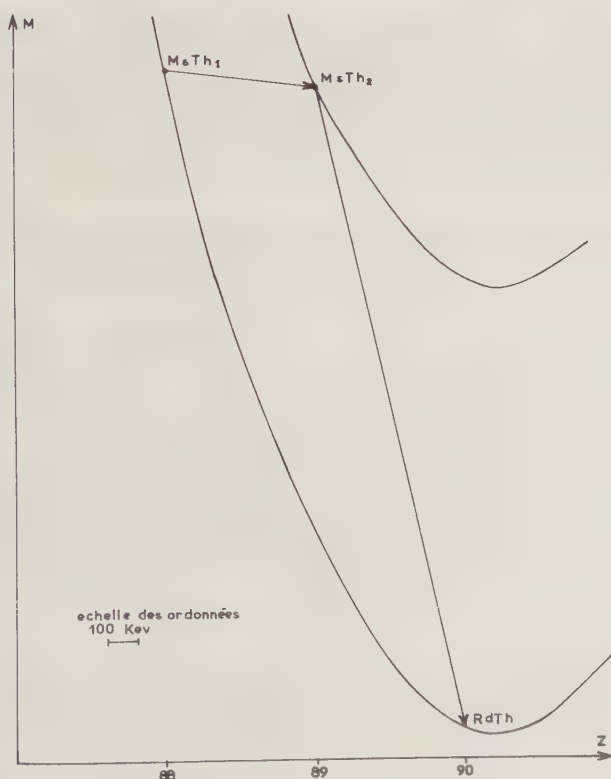


Figure 1 : Faiblesse de l'émission β à partir d'un noyau de Z pair et de A pair. Cas du $MsTh_1$.

La grande incertitude sur la constante d'assymétrie dont le rôle est important ne semble pas cependant expliquer entièrement un tel désaccord qui paraît provenir surtout de la valeur de l'énergie de paires. Nous nous sommes alors livrés à un calcul inverse de redétermination de ces deux constantes à l'aide des valeurs expérimentales que nous admettons comme suit :

$$Ms Th_1 \rightarrow Ms Th_2 + 0,050 \text{ Mev.}$$

$$Ms Th_2 \rightarrow Rd Th + 2,16 \text{ Mev. Nous obtenons :}$$

$$u_a = 20,0 \text{ d'où } a = -80,9 \text{ et } b = 0,450, \text{ soit } Z_0 = 90,2 ; \text{ puis } \delta \neq 0,750.$$

La valeur pour u_a ne sort pas pratiquement de la statistique admise, tandis que pour l'énergie de paire, le désaccord est très net.

Une autre série plus récente de valeurs pour ces constantes est domée dans les tables de G.J. Nijgh (32) en même temps que l'expression très différente déjà signalée pour l'énergie de paire : $\delta = 11,21 A^{-1/2}$, soit ici 0,742 Mev, ce qui rejoint très bien le résultat précédent. Mais ce jeu de constantes assez différentes (u_c en particulier est égal à 0,714 Mev), s'il conduit à un résultat assez correct pour le $Ms Th_2$ ($\approx 2,1$ Mev) ne donne qu'une estimation très grossière pour le $Ms Th_1$ (≈ 150 Kev).

A vrai dire, les équations sont trop sensibles à la constante d'énergie coulombienne u_c , dont les déterminations sont divergentes par suite de l'imprécision sur le rayon nucléaire unité R_0 et surtout il convient de remarquer que cette énergie doit être bien diminuée par la déformation du noyau. Il faudrait faire un calcul statistique soigné à l'aide des chaînes isobariques des atomes lourds voisins dont les schémas de désintégration sont maintenant mieux connus.

B) NIVEAUX EXCITES DE FAIBLE ENERGIE DES NOYAUX. MODELE EN COUCHES ET MODELE COLLECTIF.

L'étude des niveaux excités des noyaux fournit des renseignements importants sur la structure nucléaire. Cette étude constitue un travail d'une ampleur considérable, faisant appel à des techniques très variées. Nous nous intéresserons ici aux niveaux excités de faible énergie, qui sont souvent alimentés par des désintégrations α ou β et se dés excitent en des temps variables mais le plus souvent très courts par émission γ ou conversion interne. Ces niveaux sont caractérisés par leur énergie, leur moment cinétique, leur parité, leur moment magnétique, etc... L'étude de la conversion interne fournit des renseignements sur les trois premiers paramètres ci-dessous.

L'interprétation de ces niveaux excités est un des buts de la théorie de la structure nucléaire. Une théorie parfaitement satisfaisante partirait des forces nucléaires, c'est-à-dire s'exerçant entre deux nucléons et en déduirait les propriétés des noyaux. C'est pratiquement ce qui est réalisé pour la structure atomique bien que les difficultés de calcul soient considérables. Pour le noyau, la

situation est beaucoup moins satisfaisante, car les forces nucléaires ne sont pas encore parfaitement connues et les difficultés de calcul sont encore plus grandes. Aussi on a dû se tourner vers l'étude de "modèles", basés sur des hypothèses simplificatrices dont l'utilité est cependant très grande mais qui ne peuvent prétendre expliquer parfaitement tous les faits.

Un modèle qui paraît peu réaliste à première vue est celui des particules indépendantes. Il néglige les interactions individuelles entre nucléons et admet que chacun d'eux occupe un niveau d'énergie dans un puits de potentiel commun. Malgré cette hypothèse simplificatrice, ce modèle rencontre des succès étonnants dans l'interprétation des moments cinétiques et même des moments magnétiques. Il est cependant nécessaire comme l'a montré M.G. Mayer (33) d'admettre une forte interaction spin-orbite. Dans ces conditions, les niveaux excités d'un puits de potentiel rectangulaire très profond permettent de retrouver les niveaux de nucléons et d'interpréter les "nombres magiques" connus depuis longtemps. Ces nombres de nucléons (2, 8, 20, 28, 50, 82, 126) confèrent au noyau une stabilité particulière qui se traduit par diverses conséquences (forme sphérique du noyau, espacement des niveaux excités, etc...) Ces nucléons sont donc disposés par couches, présentant une lointaine analogie avec les couches électroniques de l'atome, d'où le nom de "modèles en couches".

On est donc conduit à se représenter un noyau "non magique" comme formé d'un "cœur" de nucléons en nombres magiques, autour duquel gravitent les nucléons supplémentaires. On a pu édicter des règles de couplage entre ces nucléons qui interprètent bien les moments cinétiques et aussi les probabilités d'émission β .

Un autre modèle, dont on a parlé plus haut, est celui de la goutte liquide. Il permet d'expliquer assez bien le phénomène de fission, mais la traduction de certains niveaux excités comme des oscillations d'ensemble de la goutte fut longtemps mise en doute. C'est A. Bohr et B. Mottelson (34) qui montrèrent que les niveaux excités de basse énergie de nombreux noyaux pouvaient s'interpréter à l'aide des rotations et des vibrations de la goutte liquide nucléaire. Si on considère la classification des noyaux par valeurs de A croissantes, on remarque, près des nombres magiques des noyaux peu déformés et entre ces nombres, des régions de forte déformation. Cette déformation du noyau se traduit par l'apparition de moments quadrupolaires importants et par un spectre de niveaux excités caractéristiques, tout au moins dans les noyaux du type pair-pair. Ces niveaux de rotation ressemblent à ceux, bien connus en mécanique quantique, du rotateur spatial; mais il faut tenir compte de la structure fluide du noyau, la rotation n'est pas celle d'un corps rigide, mais la propagation d'une onde de rotation dans la matière nucléaire. Ce modèle interprète remarquablement les propriétés des niveaux excités de faible énergie des noyaux déformés et en particulier la probabilité remarquablement élevée de désexcitation par émission quadrupolaire. On lui donne le nom de "modèle

collectif" par opposition au modèle des particules indépendantes.

La déformation du noyau étant un fait acquis, on peut reprendre, comme l'a fait Nilsson (35), l'étude des orbites des nucléons extérieurs au "cœur", en ne supposant plus celui-ci sphérique, mais ellipsoïdal.

On fait ainsi une synthèse entre le modèle des couches et le modèle collectif. On arrive ainsi à interpréter d'une façon satisfaisante les systèmes de niveaux excités de certains noyaux déformés et les probabilités de transitions β et γ . Malheureusement dans la région des noyaux lourds, le nombre d'orbites devient plus grand et la déformation du noyau est souvent mal connue. Enfin dans les noyaux de type impair-impair auxquels nous nous intéressons particulièrement, les règles de couplage sont pratiquement inconnues et, ainsi qu'on le verra plus loin, l'étude de ces noyaux est à peine ébauchée à l'heure actuelle.

C) CONVERSION INTERNE ET REARRANGEMENT ELECTRONIQUE

1. CONVERSION INTERNE.

1 - Définition. Lorsqu'un noyau se trouve dans un état excité, par exemple à la suite d'une désintégration β ou α , le retour au niveau fondamental ou à un niveau plus bas se traduit essentiellement par l'émission d'un photon ou l'éjection d'un électron du cortège. Dans ce dernier cas, qui correspond à ce que l'on appelle la conversion interne, l'électron possède une énergie E satisfaisant à la relation :

$E = h\nu - W_e$, en notant par $h\nu$ l'énergie totale disponible d'excitation et par W_e l'énergie de liaison de l'électron sur son orbite.

Suivant la couche à laquelle appartient l'électron, on parlera de conversion K, L, M... A cette émission, correspond donc, au spectromètre magnétique, un spectre de raies que l'on s'efforcera de séparer, leur comparaison apportant de précieux renseignements sur la nature des deux niveaux.

Il est essentiel de remarquer que l'électron est éjecté par interaction directe du champ électromagnétique du noyau. Ce phénomène de conversion interne n'est pas en compétition avec l'émission γ , mais s'y ajoute comme une voie de désexcitation indépendante. La constante radio-active λ correspondant à la période T observée du niveau excité se décompose donc en deux probabilités λ_γ et λ_e .

On définit le coefficient de conversion α par le rapport du nombre d'électrons éjectés au nombre de photons émis pendant ce même temps :

$$\alpha = \frac{N_{\epsilon}}{N_{\gamma}} \quad \text{avec } N_{\epsilon} = N_K + N_L + N_M + \dots \text{ soit } \alpha = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots$$

$$\text{ou } \alpha = \frac{\lambda_{\epsilon}}{\lambda_{\gamma}} \quad \text{et } \lambda = \lambda_{\gamma} (1 + \alpha) \text{ soit } T_{\gamma} = T (1 + \alpha), T_{\gamma} \text{ serait la période}$$

du niveau excité si le noyau était débarrassé de son cortège. C'est cette période qu'il faut utiliser pour vérifier les prédictions théoriques et pour comparer les niveaux excités.

2 - Variations du coefficient de conversion. Le coefficient de conversion dépend des facteurs suivants :

a) l'énergie de la transition $h\nu$ et le numéro atomique Z du noyau excité. Ses variations peuvent être considérées comme fonction de $\frac{Z^2}{h\nu}$.

b) la couche ou sous-couche d'où l'électron est émis.

c) enfin la multipolarité de la transition et le changement de parité.

Si on désigne par $\vec{J}_i$ et $\vec{J}_f$ les moments angulaires des deux niveaux initial et final et par $\vec{l}$ le moment cinétique intrinsèque du rayonnement correspondant à un multipôle électrique ou magnétique d'ordre l , la composition vectorielle traduisant la conservation du moment angulaire du système noyau + γ conduit aux relations extrêmes : $|J_f - J_i| < l < J_f + J_i$.

On montre que la probabilité d'émission décroît très vite avec la multipolarité l , on n'aura donc en général qu'un seul rayonnement correspondant à la polarité minimum. Par contre, on voit donc que le coefficient α croît très vite avec l .

Le changement de parité $\Delta\pi$ est lié à la nature du rayonnement ; suivant qu'il s'agit d'un multipôle électrique ou magnétique, les règles de sélection se traduisent par les relations :

$$\Delta\pi = \frac{\pi}{\pi} \frac{1}{f} = (-1)^l \quad \text{pour une radiation électrique d'ordre } l,$$

notée habituellement E_l .

et $(-1)^{l-1}$ pour une radiation magnétique d'ordre l , notée habituellement M_l . Le tableau suivant résume cet énoncé :

$\Delta J = J_f - J_i$ chg ^t de parité $\Delta\pi$	1	2	3	4
oui	E_1	M_2	E_3	M_4
non	M_1	E_2	M_3	E_4

Pour une même valeur de l , les coefficients de conversion correspondant à une transition électrique sont en général plus petits que pour une transition magnétique.

La sensibilité de α à ces derniers facteurs permet très souvent de déterminer la nature de la transition, donc le spin et la parité de certains niveaux, par la seule connaissance

expérimentale des rapports $\frac{\alpha_K}{\alpha_L}$ ou $\frac{\alpha_{L_I}}{\alpha_{L_{II}}}$, etc....

3 - Calcul des coefficients de conversion. Par contre, le coefficient de conversion ne dépend pas, en première approximation, de la fonction d'onde nucléaire. Ceci est rigoureux si le noyau est considéré comme ponctuel et alors un calcul assez précis est possible en supposant que la théorie des perturbations est applicable à l'expression des deux probabilités λ_γ et λ_e et que l'électron est convenablement décrit par la théorie de Dirac à une particule. Si nous voulons tenir compte des dimensions finies du noyau, il faut introduire deux corrections correspondant à ce que l'on appelle les effets statiques et les effets dynamiques. Cette dernière correction est de loin la plus délicate, elle est heureusement assez faible. Pour l'effectuer, il faut admettre un modèle nucléaire, en particulier pour exprimer les densités de courant des nucléons. Ces calculs ont été effectués principalement par deux groupes, celui de M.E. Rose et celui de Sliv. Les valeurs de Sliv tiennent compte des effets dynamiques ; elles ont été calculées pour un modèle dans lequel les courants nucléaires sont localisés à la surface du noyau. Selon cet auteur, ses valeurs seraient très peu modifiées si on utilisait un modèle plus proche de la réalité. Les valeurs de Rose n'ont pas été corrigées pour les effets dynamiques, mais, en général, elles recourent quand même les précédentes, à moins de 5 % dans la plupart des cas. Pour les couches K , L_I et L_{II} , ces coefficients sont également corrigés de l'effet d'écran. Green et Rose (36) ont montré comment les valeurs dérivées de ces deux tables peuvent être corrigées en fonction des différents modèles nucléaires. Quant aux coefficients de conversion relatifs à la couche M , ils sont calculés pour un noyau ponctuel et sans tenir compte de l'effet d'écran. On sait que ceci ne conduit qu'à une grossière approximation et que pour les noyaux lourds par exemple, le coefficient expérimental pour certaines transitions est au moins multiplié par 2.

II. Réarrangement électronique. Effet Auger :

A la suite de la conversion interne, l'atome se trouve donc ionisé et le retour à l'équilibre définitif provoque une réorganisation électronique. Appelons A la couche dans laquelle s'est produite cette ionisation primaire. Un électron d'une couche externe B va combler ce vide et l'énergie disponible $E_A - E_B$ peut se manifester sous deux formes : d'une part, émission d'un rayonnement X de fréquence ν , donnée par $h\nu = E_A - E_B$, d'autre part, éjection d'un électron d'une couche C (C peut être identique à B) qui possèdera alors l'énergie $E_A - E_B - E'_C$. Ce dernier électron est un électron Auger qu'on notera ABC (par exemple $K L_I L_{III}$ ou $L_I M_{II} M_{IV}$).

Si d'ailleurs A et B représentent deux sous-couches d'une même couche, l'électron Auger émis, de très faible énergie, porte le nom d'électron Coster-Kronig (exemple : $L_I L_{II} M$).

Nous nous sommes intéressés principalement dans ce travail aux électrons Auger L, correspondant donc à des vacances primaires dans la couche L ($A = L_I ; L_{II}$ ou L_{III} ; $B, C = M, N$ ou O). Ils forment trois groupes difficilement séparables ; le nombre des raies qu'ils comprennent est très grand. Pour le seul ensemble LMM, ce nombre est en principe de 75. Il est en fait sensiblement diminué et ramené à 45, si l'on remarque que deux électrons $L M_p M_q$ et $L M_q M_p$ doivent posséder pratiquement la même énergie puisque dans les deux cas les états initial et final de l'atome sont les mêmes.

1 - Energie des électrons Auger : Dans l'expression de l'énergie, E_A et E_B représentant l'énergie de liaison dans les couches A et B des électrons de l'atome de numéro atomique Z, E'_C l'énergie de liaison de l'électron dans la couche C de l'atome de même Z, déjà ionisé dans la couche B. Comme on peut s'y attendre, on trouve expérimentalement cette énergie de liaison supérieure à l'énergie E_C de l'électron dans l'atome non ionisé. Il est difficile de la connaître exactement, on peut la calculer en principe, mais on est contraint d'utiliser des fonctions d'onde obtenues empiriquement.

Dans la majorité des cas, on utilise l'approximation suivante :

$$E'_C{}^Z = E_C{}^Z + 1$$

Certains auteurs ont préconisé l'introduction d'un incrément de charge ΔZ , comme cela est fait pour les Auger-K (Bergström et Hill) (37) défini par :

$$\Delta Z = \frac{E'_C{}^Z - E_C{}^Z}{E_C{}^{Z+1} - E_C{}^Z}, \text{ d'où } E'_C{}^Z = E_C{}^Z + (E_C{}^{Z+1} - E_C{}^Z) \Delta Z.$$

L'inconvénient est que ΔZ est obtenu expérimentalement et l'enchevêtrement des raies en rend sa détermination aléatoire.

2 - Rendement Auger L et Coster-Kronig : La fraction du nombre de vacances primaires qui conduit à l'effet Auger constitue le rendement Auger, soit a . Son complément $\bar{a}$ qui correspond à la fraction conduisant à l'émission de rayons X s'appelle le rendement de fluorescence. $a + \bar{a} = 1$.

On définit de même les rendements partiels Auger et de fluorescence se rapportant aux différentes sous-couches, soient a_1, a_2, a_3 et $\bar{a}_1, \bar{a}_2, \bar{a}_3$. Ils sont caractéristiques de l'atome et ne dépendent pas, comme le rendement global a (ou $\bar{a}$) du mode d'excitation.

Nous désignerons par f_{12}, f_{13} et f_{23} les rendements Coster-Kronig pour le transfert de l'ionisation d'un niveau représenté par le premier indice au niveau représenté par le second.

La détermination expérimentale de ces divers rendements conduit au système d'équations suivant que nous écrivons en utilisant les notations de M. A. S. Ross (38).

soient : n_1, n_2, n_3 les nombres de vacances primaires par désintégration dans les niveaux L_I, L_{II}, L_{III} .

I, F et A les nombres totaux par désintégration de vacances L , de rayons $X L$ et d'électrons Auger L .

$1/C_2/C_3$ les nombres relatifs de vacances primaires dans les trois niveaux.

$1/F_2/F_3$ les nombres relatifs de rayons XL produits à partir des 3 niveaux.

$1/A_2/A_3$ les nombres relatifs d'électrons Auger L émis à partir des 3 niveaux.

$$n_1 + n_2 + n_3 = I = A + F$$

$$n_1 = \frac{n}{C} \frac{2}{2} = \frac{n}{C} \frac{3}{3}$$

$$\omega_1 n_1 + \omega_2 (n_2 + f_{12} n_1) + \omega_3 [n_3 + f_{13} n_1 + f_{23} (n_2 + f_{12} n_1)] = F$$

$$a_1 n_1 + a_2 (n_2 + f_{12} n_1) + a_3 [n_3 + f_{13} n_1 + f_{23} (n_2 + f_{12} n_1)] = A$$

$$\omega_1 n_1 = \frac{\omega_2 (n_2 + f_{12} n_1)}{F_2} = \frac{\omega_3 [n_3 + f_{13} n_1 + f_{23} (n_2 + f_{12} n_1)]}{F_3}$$

$$a_1 n_1 = \frac{a_2 (n_2 + f_{12} n_1)}{A_2} = \frac{a_3 [n_3 + f_{13} n_1 + f_{23} (n_2 + f_{12} n_1)]}{A_3}$$

$$a_1 + \omega_1 + f_{12} + f_{13} = 1$$

$$a_2 + \omega_2 + f_{23} = 1$$

$$a_3 + \omega_3 = 1$$

L'expérience donne les quantités représentées par les lettres majuscules. L'étude de ce système montre que ces équations ne sont ni indépendantes ni suffisantes et que sa résolution complète entraîne une hypothèse supplémentaire. Une solution rigoureuse requiert donc en général une seconde série d'expériences, quelquefois possible, dans laquelle l'ionisation primaire est rendue différente. Dans la plupart des cas, on admet l'un des neuf rendements.

°
° °

CHAPITRE II

APPAREILLAGE ET TECHNIQUE

I) LE SPECTROMETRE :

Nous avons utilisé le spectromètre sans fer à double focalisation construit par A. Moussa et J.B. Bellicard (39). La double focalisation, axiale et radiale, dont le principe est maintenant bien connu (40), permet d'obtenir une véritable image de la source, égale et renversée, sur la fente du compteur G.M. par l'emploi d'un champ d'induction satisfaisant dans le plan de symétrie à la relation $B = B_0 \left(\frac{r}{r_0} \right)^{-1/2}$, r_0 est le rayon de la trajectoire moyenne, soit ici 21 cm. Dans ces conditions, l'angle de focalisation entre le rayon vecteur de la source et celui du compteur est $\pi \sqrt{2}$. Un tel champ a été obtenu par l'emploi de quatre couples de bobines symétriques par rapport au plan de symétrie.

L'absence de fer présente les deux avantages suivants : la topographie du champ demeure inchangée quel que soit le courant dans les bobines induc- trices, donc les propriétés focalisatrices sont conservées et de plus, le champ d'induction est à tout moment rigoureusement proportionnel à ce courant.

Cet appareil présente un grand pouvoir séparateur tout en conservant une bonne luminosité. On adopte pour l'ouverture s de la fente du compteur une largeur égale à celle de la source ; le pouvoir de résolution théorique est alors donné par l'expression $\Delta \left(\frac{B \rho}{B \rho} \right) = \frac{s}{r_0} = 0,325$ soit par exemple pour une source très large de 4 mm, $\Delta \left(\frac{B \rho}{B \rho} \right) = 6,2 \cdot 10^{-3}$

Trois diaphragmes éliminent les électrons diffusés par les parois de la cuve. Leurs ouvertures sont réglées de façon à permettre la meilleure luminosité sans perte du pouvoir séparateur. Le facteur de transmission est ainsi de $9 \cdot 10^{-3}$ pour l'exemple précédent d'une source de 4 mm.

a) - Son alimentation : L'alimentation des bobines est à haute tension et faible intensité. Le courant est fourni par un redresseur pouvant débiter jusqu'à 0,4 A sous une tension variable de 0 à 15.000 volts. Cette intensité maximum permet l'étude d'électrons d'énergie voisine de 1 MeV.

La faible intensité en rend la stabilisation électronique commode. Cette dernière est du type direct. Une résistance étalon et une résistance variable se trouvent en série avec les bobines. La résistance étalon sert à la mesure du courant par la méthode d'opposition avec un potentiomètre et une pile étalon. La tension aux bornes de la résistance variable est comparée à la tension constante d'un tube à gaz grâce à un amplificateur différentiel à courant continu qui règle les grilles de commande des cinq tubes 807 en série eux-aussi avec les bobines. L'intensité du courant se trouve stabilisée à 10^{-4} près pour des variations du secteur de l'ordre de 10 %/.

Le système de pompage, éloigné du spectromètre pour éviter les perturbations magnétiques, permet le maintien dans la cuve d'un vide de l'ordre de 10^{-4} mm. de mercure, contrôlé par une jauge Pirani.

Le champ d'induction terrestre conduisant à un astigmatisme prohibitif dans l'étude des électrons de basse énergie, sa composante verticale - la plus gênante - fut compensée par un système de deux grandes bobines rectangulaires horizontales disposées symétriquement et alimentées en courant stabilisé. Cette compensation est réalisée à 10^{-3} près. Des cadres du même type sont construits pour corriger la composante horizontale, mais son influence est déjà rendue presque négligeable grâce à l'orientation nord-sud du système source-compteur.

b) - Système de comptage : Les caractéristiques d'un tel spectromètre le prédestinent aux études d'électrons de basse énergie. Le compteur G. M. qu'il contient est obturé par une fenêtre latérale mince qui doit donc être très fine pour que l'absorption soit réduite au minimum et en même temps étanche et suffisamment résistante pour tenir une pression de l'ordre de 2 à 4 cm. de mercure.

Il en existe deux sortes. Les plus épaisses ($> 20 \mu \text{ g/cm}^2$) sont constituées par 3 ou 4 couches de formvar déposées sur un cadre de néoprène présentant une ouverture de $3 \times 0,8$ cm. La technique d'obtention de ces films de formvar a déjà été souvent décrite : on décolle sur l'eau la couche formée sur un verre spécialement préparé après immersion dans une solution chloroformique de la matière plastique. Les plus fines, dont l'épaisseur est de l'ordre de $10 \mu \text{ g/cm}^2$, sont préparées de la même façon mais elles sont déposées sur une grille de lektromesh transparente à 50 % soudée à un cadre de laiton.

Ces fenêtres se caractérisent par leur courbe d'absorption (fig. 2) qui est tracée en comparant les taux de comptages avec et sans post accélération d'un spectre continu, en particulier celui du soufre 35. La limite supérieure d'absorption totale s'appelle le cut off. Il se situe pour les plus fines vers 1,5 KeV, ce qui permet l'étude d'électrons mous sans correction sensible jusque vers 6 KeV.

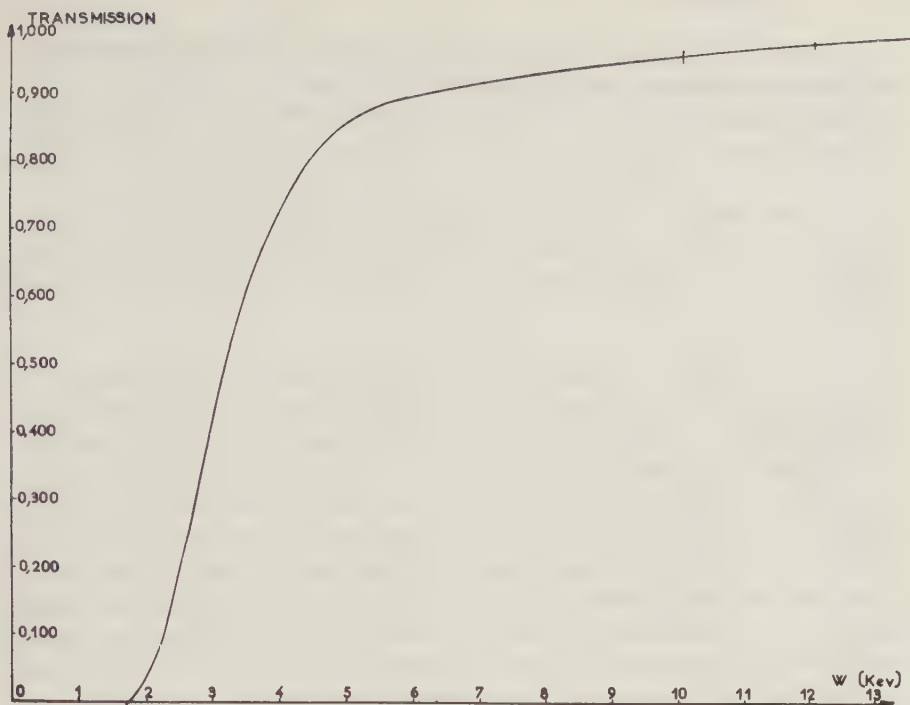


Figure 2 : Courbe de transmission d'une fenêtre sur lektromesh -

Le gaz contenu dans le compteur est un mélange à 50 % d'éthanol et et d'argon. Des canalisations de verre annexes en permettent l'obtention et la réserve. La pression d'utilisation dans le compteur est mesurée par un manomètre différentiel à huile.

Le système électronique de comptage comprend un préamplificateur de gain 30 situé près du spectromètre. Les impulsions sont conduites par un câble adapté par un cathode-follower à l'amplificateur principal de gain variable, mais fixé habituellement à 30. La sortie est dirigée sur un oscillographe de contrôle et à l'entrée d'une échelle de comptage. La base de temps de l'oscillographe est déclenchée par les impulsions si bien qu'elles apparaissent toutes à la même place sur l'écran et le réglage en est facilité. Leur hauteur est maintenue constante en agissant au besoin sur la tension aux bornes du compteur.

Le spectromètre comprend en outre un dispositif de pré et de post accélération. La préaccélération, mise au point par Mlle Juillard (41), nécessite des corrections et n'est indispensable que si l'on veut descendre dans la région de 0 à 3 KeV. La qualité de nos sources n'a jamais permis l'étude d'électrons si mous et la postaccélération fut toujours suffisante. Le compteur est isolé électriquement et porté à une haute tension positive, sa fente collimatrice étant maintenue au potentiel du sol. Cette tension accélératrice est bornée à 1.500 volts environ ; au-delà, on observe une augmentation considérable du bruit de fond.

II) SOURCES :

La spectrométrie β exige des sources d'excellente qualité, devant satisfaire en particulier aux deux conditions suivantes :

- elles doivent être très fines et uniformes pour éviter la self-absorption.
- leurs supports doivent être eux aussi très minces pour éviter le back-scattering.

La technique d'obtention du dépôt actif lui-même sera décrite dans les divers cas particuliers. Le point commun essentiel en est le principe même, c'est-à-dire l'évaporation dans le vide. Aucune autre méthode ne peut donner au mince dépôt l'uniformité nécessaire.

a) - Supports : Le support doit, malgré sa finesse, pouvoir résister au choc thermique lors de l'évaporation du produit actif. Lorsque ce choc n'est pas trop brutal, c'est-à-dire lorsque la température de dépôt ne dépasse pas 1300-1500° C, on peut utiliser un film de formvar d'épaisseur variant entre 10 et 40 μ g/cm², déposé sur un cadre circulaire d'aluminium de 2 cm de diamètre. La source devant évidemment demeurer au potentiel du sol, ce film est rendu conducteur par un léger dépôt d'aluminium dans le vide (5 à 10 μ g/cm²). Dans les cas moins favorables, où la température d'évaporation atteint ou dépasse 2000° C, le support ne peut guère être qu'en mica mince obtenu par clivage sous l'eau. Son épaisseur est rarement inférieure à 1 mg/cm². Le film conducteur ne peut non plus être alors en aluminium qui s'évapore sous l'impact des atomes qui s'y déposent ; on emploie le titane, métal d'assez faible masse atomique ($M = 48$) et de point de fusion élevé ($F = 1795^\circ \text{C}$), ou mieux le graphite, mais dont l'adhérence est parfois trop légère. Ce graphitage du mica se fait dans le vide en plaçant le support au voisinage d'un arc basse tension jaillissant de deux tiges de graphite en contact par leurs pointes et parcourues par un courant d'une centaine d'ampères. Le dépôt obtenu ainsi sans projections est aussi brillant et uniforme que le dépôt de titane.

De nombreux autres supports furent essayés dans l'espoir d'obtenir des lames beaucoup plus minces que le mica. Des films de verre Pyrex obtenus par soufflage ne résistaient guère aux chocs thermiques et de fins dépôts de graphite décollés de plaques de verre sur l'eau ne présentaient pas une résistance mécanique suffisante. L'expérience nous a montré, il est vrai, que la pureté et l'uniformité du matériau actif étaient plus importantes que la qualité du support, la self absorption dominant en général très largement la rétrodiffusion.

b) - Gouttières d'évaporation : Les gouttières d'évaporation sont généralement en platine, molybdène ou tantale. Elles ont la forme de petits creusets de 1 à 2 cm. de long placés horizontalement dont la section est en U ou V. Leur contenance varie de 10 à 100 mm³. Elles sont insérées dans un circuit électrique comprenant le secondaire d'un transformateur à haute intensité, dont le primaire est alimenté par un alternostat branché sur le secteur. La détermination des températures par couple thermoélectrique étant difficile, nous avons

procédé à un étalonnage à l'aide d'un pyromètre à disparition de filament pour les températures supérieures à 900-1000°C . Pour les plus basses températures, la courbe obtenue fut extrapolée en mesurant la tension et l'intensité, la résistance ohmique de la gouttière étant supposée fonction linéaire de la température. Chaque gouttière possède donc sa courbe d'étalonnage. (figure 3).

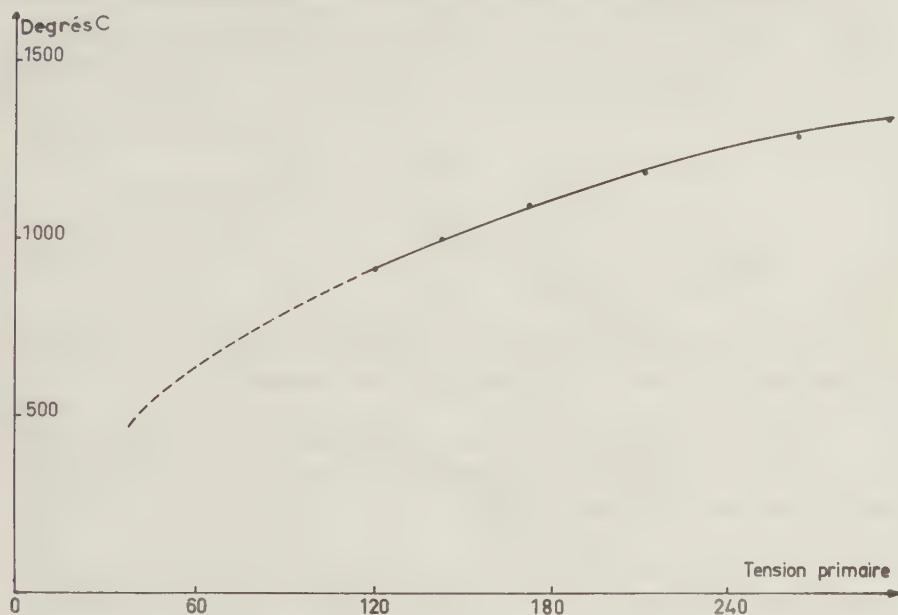


Figure 3 : Etalonnage en température d'une gouttière de platine.

Nous portons les températures en fonction de l'angle lu sur la graduation du transformateur variable.

Le platine, très malléable et facile à nettoyer par passage dans la flamme d'un bec, ne peut être utilisé pour les hautes températures ($F = 1775^{\circ}\text{C}$). Pour ces dernières, on utilise de préférence le tantale ($F = 2850^{\circ}\text{C}$ environ) très malléable également et très résistant aux acides minéraux. Ces gouttières sont purifiées en les portant à haute température dans le vide pendant un certain temps.

III) ETUDE DE LA CROISSANCE D'UN DERIVE RADIO-ACTIF PAR LA METHODE DES MOINDRES CARRES

Cette méthode de calcul fut utilisée à plusieurs reprises au cours de notre travail, en particulier à l'étude des taux de comptages en fonction du temps d'une source d'un corps radio-actif A, aussi bien séparé que possible au début des comptages de son descendant immédiat B de période courte. Nous

pouvons déduire de tous les taux enregistrés les proportions respectives les plus probables de A et de B à l'équilibre, dans la région du spectre étudié.

Sans aucunement en faire l'exposé mathématique, nous nous contentons d'en énoncer très simplement le principe qui est rappelé dans l'ouvrage "Probabilités et Erreurs" de Borel E. et Deltheil R. (42) Soient $y_1, y_2, y_3, \dots, y_n$ les résultats de mesures qui peuvent s'exprimer en fonction des inconnues $x_1, x_2 \dots x_m$ par des relations :

$$y_1 = f_1(x_1, x_2, \dots x_m)$$

$$y_2 = f_2(x_1, x_2, \dots x_m)$$

$$y_n = f_n(x_1, x_2, \dots x_m)$$

Le nombre n des mesures effectuées est supérieur au nombre m des inconnues. Quelles sont les valeurs les plus probables de ces dernières ?

Si nos mesures étaient exactes, il est évident qu'une telle question ne se poserait pas, puisque ces équations seraient alors compatibles, bien qu'en nombre supérieur à celui des inconnues.

Mais nos y_i ne sont qu'approchés et pour rendre le système compatible, nous devons leur faire subir des corrections u_i , représentées par les équations :

$$y_1 + u_1 = f_1(x_1, x_2 \dots x_m)$$

$$y_2 + u_2 = f_2(x_1, x_2 \dots x_m)$$

$$y_n + u_n = f_n(x_1, x_2 \dots x_m)$$

La probabilité pour que les erreurs de mesures soient précisément les corrections u_i est montrée proportionnelle à e^{-S} avec $S = h_1 u_1^2 + h_2 u_2^2 + \dots$ en désignant par $h_1, h_2 \dots$ les poids des mesures.

Cette probabilité sera maximum quand S sera minimum, d'où le nom de méthode des moindres carrés ; les valeurs les plus probables des u , donc aussi des x résultent donc de la résolution du système :

$$\frac{dS}{dx_1} = 0 \quad \frac{dS}{dx_2} = 0 \dots \quad \frac{dS}{dx_m} = 0$$

$$\text{avec } S = \sum_1^m h_i \left[f_i(x_1, x_2 \dots x_m) - y_i \right]^2$$

Nous allons en préciser l'application dans le cas le plus simple qui se soit présenté pour nous, d'une source de RaD étudiée au cours de la croissance du RaE. La relation :

$n_i = N_D + N_E (1 - e^{-\lambda(t_i - t_0)})$ exprime cette évolution en cours du temps du taux de comptage n_i effectué à l'instant t_i , en désignant par N_D et N_E les proportions respectives de RaD et de RaE à l'équilibre radio-actif, λ est la constante radio-active du RaE et t_0 l'époque origine de la séparation complète, c'est-à-dire le début de la croissance ; t_0 est aussi pratiquement, avec N_D et N_E , une de nos inconnues.

La somme à minimiser s'écrit :

$$S = \sum \left[n_i - N_D - N_E (1 - e^{-\lambda(t_i - t_0)}) \right]^2 ; \text{ elle conduit au système suivant,}$$

en posant $e^{-\lambda t_i} = b_i$ et en désignant par M le nombre des mesures :

$$\frac{dS}{dN_E} = 0 \quad \text{soit} \quad \sum n_i - M(N_D + N_E) + e^{\lambda t_0} (2N_E + N_D) \sum b_i - e^{\lambda t_0} \sum b_i n_i - e^{2\lambda t_0} N_E \sum b_i^2 = 0 \quad (1)$$

$$\frac{dS}{dN_D} = 0 \quad \text{soit} \quad \sum n_i - M(N_D + N_E) + e^{\lambda t_0} N_E \sum b_i = 0 \quad (2)$$

$$\frac{dS}{d(e^{\lambda t_0})} = 0 \quad \text{soit} \quad \sum n_i b_i + e^{\lambda t_0} N_E \sum b_i^2 - (N_D + N_E) \sum b_i = 0 \quad (3)$$

Mais ces trois équations ne sont pas indépendantes (1) - (2) conduit à (3). Ceci résulte d'une propriété de la fonction exponentielle caractérisée par l'identité :

$$n_i = N_D + N_E (1 - e^{-\lambda(t_i - t_0)}) \equiv N_E' (1 - e^{-\lambda(t_i - t_0')}) \text{ et illustrée par la figure 4.}$$

On ne peut connaître en même temps par une même série de mesures l'époque origine t_0 et le taux initial N_D correspondant au RaD.

Nous sommes donc contraints de déterminer t_0 (qui est une constante pour une source) par un autre système de mesures, appliquées à une région du spectre où nous savons que N_D sera nul.

Ceci fait, les solutions sont :

$$N_E = e^{-\lambda t_0} \frac{\sum b_i \sum n_i - M \sum b_i n_i}{M \sum b_i^2 - (\sum b_i)^2}$$

$$\text{et } N_D + N_E = \frac{\sum n_i \sum b_i^2 - \sum \bar{b}_i n_i \sum b_i}{M \sum b_i^2 - (\sum b_i)^2}$$

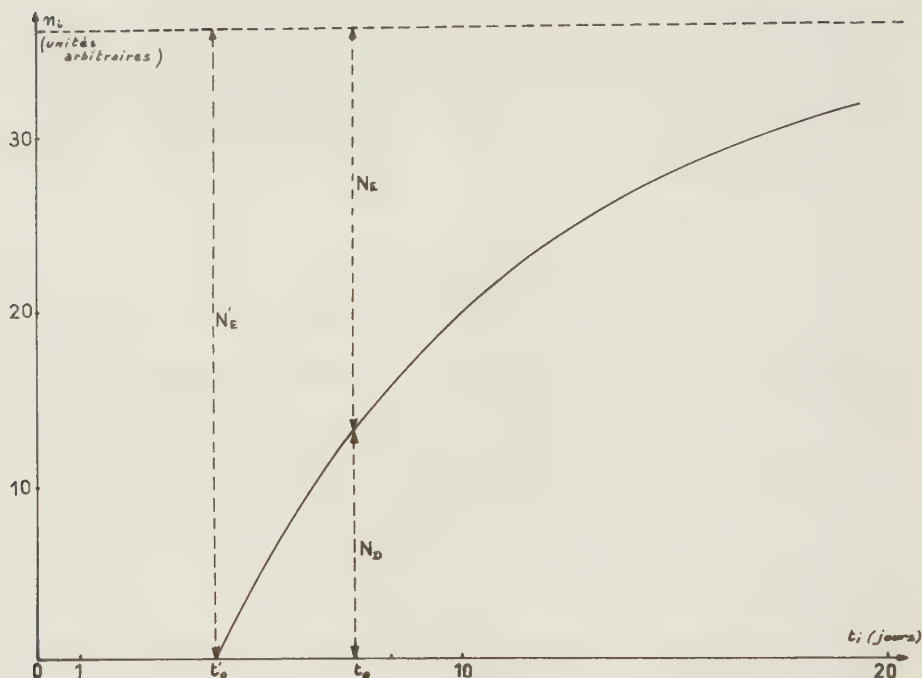


Figure 4

Un calcul de la précision obtenue est évidemment effectué pour chaque résultat. Les poids des mesures sont pris égaux. Si n et n_0 sont les taux de comptages enregistrés pendant le temps t pour une région du spectre et pour le fond continu propre au compteur, on sait que l'erreur statistique absolue admise sur le nombre d'électrons $\frac{n - n_0}{t}$ comptés par unité de temps est $\frac{\sqrt{n+n_0}}{t}$; les temps de comptage sont toujours choisis pour que les erreurs relatives correspondantes soient du même ordre.

Nous donnons ci-dessous à titre d'exemple un fragment de tableau utilisé dans cette étude. Il correspond d'ailleurs à un cas défavorable où N_D est petit devant N_E . (voir à ce sujet la figure 8).

Remarques : 1) L'origine des temps est évidemment arbitraire. Pour cette même source la détermination de t_0 par la méthode indiquée ci-dessus donne: $t_0 = 8,52$ heures.

2) La colonne des n_i^2 permet le calcul des $\sum u_i^2$ qui conduit à une évaluation de la précision. Dans l'hypothèse de poids égaux, le résidu moyen est donné par

$\chi^2 = \frac{\sum u_i^2}{M-2}$. On doit vérifier que u_i est du même ordre que l'erreur quadratique Δy de comptage sur y . Une méthode plus complexe permet d'obtenir le "facteur de consistance" dont Fisher a donné l'expression théorique. Nous avons en général obtenu un accord satisfaisant.

n°	t _i (h)	t _i	b _i	n _i	n _i b _i	b _i ²	n _i ²
1	11,33	0,06527	0,9368	12,1	11,335	0,8776	146,4
2	14,82	0,08538	0,9180	12,5	11,475	0,8427	156,2
3	15,33	0,08832	0,9154	14,7	13,456	0,8380	216,1
4	15,75	0,09073	0,9132	14,8	13,515	0,8339	219,0
5	16,75	0,09650	0,9080	18,9	17,161	0,8245	357,2
6	17,50	0,10081	0,9040	21,4	19,346	0,8172	457,9
7	17,75	0,1023	0,9028	22,2	20,046	0,8150	492,8
8	33,82	0,1948	0,8230	28,2	23,209	0,6773	795,2
9	34,33	0,1978	0,8213	26,2	21,518	0,6745	686,4
49	707,7	4,077	0,0169	103	1,741	0,00029	10.609
50	710,7	4,094	0,0166	105	1,743	0,00028	11.025
Σ			26,6439	2709,2	1004,3	18,8644	189.195

Nous avons trouvé $N_E = 89,5 \pm 2$

$N_D + N_E = 104,4 \pm 1$, soit $N_D = 14,9 \pm 3$

Dans le cas $Ms Th_1 \rightarrow Ms Th_2$, le système d'équations serait le même, mais la présence du radium 226 introduit un terme supplémentaire dû à la croissance du radon. On a alors trois équations normales indépendantes à cinq inconnues. Le temps origine de la séparation $Ms Th_1 - Ms Th_2$ est déterminée comme ci-dessus, celui de la séparation $Ra - Rn$ est connu par l'instant d'évaporation de la source. Le système d'équations est beaucoup plus complexe et la majorité des calculs furent effectués à la machine à calculer électronique.

°
° °

CHAPITRE III

RADIUM D

I) PREPARATION DES SOURCES :

Le RaD peut s'extraire directement des minerais d'uranium dans lesquels il s'est accumulé, mais, dans ces conditions, sa concentration reste infime, il est mélangé au plomb inactif dans une proportion de l'ordre de 10^{-7} à 10^{-8} (43). L'activité spécifique est donc très faible, de l'ordre de 10^{-6} curie/g, tout à fait insuffisante pour cette étude.

Une meilleure méthode consiste à l'extraire d'anciennes solutions de ^{226}Ra par précipitation par H_2S avec Cu ou Bi comme entraîneurs en milieu chlorhydrique. L'activité spécifique obtenue est évidemment fonction de la pureté de la solution initiale de ^{226}Ra ; de toute façon, elle est limitée par la présence du ^{206}Pb formé. Pour une accumulation de 22 ans, à partir d'une solution contenant 1 gramme de ^{226}Ra , la quantité de RaD formé est de 6,3 mg et celle de ^{206}Pb 2,5 mg, soit théoriquement une activité spécifique qui est voisine du maximum possible de 56 c/g.

La solution présentant à priori le plus de garanties de pureté réside dans l'emploi de vieilles ampoules de radon. Il ne faut pas évidemment que ces ampoules soient trop anciennes pour la raison signalée plus haut et le verre constituant doit être aussi exempt de plomb que possible.

Les solutions-mères servant à la préparation de nos sources de RaD et RaE eurent deux provenances. D'une part, une solution nous fut fournie par le

Radiochemical Centre d'Amersham. Placée dans un tube de verre au borosilicate, elle a pour activité 2 millicuries de RaD en équilibre approximatif avec ses descendants, dans 0,37 gramme de HNO_3 2,5 N. Le poids total de plomb est 0,71 mg, soit une activité spécifique d'environ 3 curies/g. D'autre part, une solution fut obtenue avec de vieilles ampoules de radon du laboratoire.

Cette dernière solution est réalisée de la façon suivante. Les ampoules (au nombre de 12) sont soigneusement nettoyées au benzène, traitées par le mélange sulfochromique à chaud, puis lavées à l'eau bidistillée. Elles sont ensuite pilées, puis attaquées par de l'acide nitrique 5 N. La solution obtenue est évaporée à sec et laisse un très léger dépôt blanchâtre. Nous reprenons par un centimètre cube de HNO_3 0,1 N. L'activité globale, estimée grossièrement au compteur G.M. sur une partie aliquote en supposant une efficacité totale pour les β du RaE comptés seuls est de l'ordre de 60 microcuries.

A partir de ces solutions, nous disposons de plusieurs techniques de séparation RaD - RaE - Po pour l'obtention de sources de RaD seul ou de RaE pour la spectrométrie β . Citons la plus ancienne signalée par Mme P. Curie (43); par cristallisation fractionnée de la solution nitrique, on obtient des cristaux entièrement exempts de RaE et Po.

Une technique très répandue d'élimination du polonium est son dépôt spontané sur lame d'argent ou de cuivre tournant lentement dans la solution qui peut être soit acétique soit faiblement nitrique, mais qui doit toujours contenir un peu d'acide chlorhydrique. Lorsque le polonium est éliminé de la solution, le dépôt de RaE s'opère très bien sur une lame de nickel tournant dans la solution chlorhydrique chaude.

Ces opérations commodées présentent de graves inconvénients signalés par O. Erbacher (44): entre autres, la dissolution légère, mais inévitable, d'argent et surtout de nickel dans la solution de RaD qu'il faut repurifier. Le procédé électrochimique proposé par O. Erbacher consiste en une séparation du Po et du RaE sur électrode de platine saturée d'hydrogène. Cette technique a été assez employée, en particulier par Cranberg (8), qui prépare ses sources du RaD, après cette séparation, en déposant de 10 à 15 μl de solution sur un film de Zapon de 5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ exposé à une atmosphère d'ammoniac pendant deux minutes pour précipiter l'hydroxyde $\text{Pb}(\text{OH})_2$ et en évaporant ensuite l'eau dans le vide. Cette méthode a été reprise également par G.M. Insch, J.G. Balfour et S.C. Curran (45), puis par G.M. Lewis (46).

Le RaD peut aussi se déposer directement sur le support de source conducteur par électrolyse. Cette technique permet en même temps une purification du produit puisque le RaD se dépose à l'anode. Elle a été employée par D.K.

Butt et W. D. Brodie (15) qui procèdent en deux étapes ; d'abord dépôt sur anode de platine, puis de la même façon transfert de ce dépôt sur une feuille d'or mince de $0,22 \text{ mg/cm}^2$ renforcée par un film de collodion. Nous avons nous-mêmes essayé un processus analogue. Le résultat est médiocre, les raies tracées sont épaisses, ce qui indique un dépôt non uniforme. Une purification par électrolyse également a été utilisée par B. Kinsey (47).

Une séparation assez commode, proposée par G. Bouissières et C. Ferradini (48) réside dans l'emploi de la dithizone en milieu chloroformique. Ces techniques d'extraction par solvant ont l'avantage de la rapidité et ne nécessitent pas de porteurs. Nous utiliserons d'ailleurs pour la séparation $\text{Ms Th}_1 - \text{Ms Th}_2$ un procédé analogue. Une telle solution organique extrait sélectivement RaD, RaE ou Po suivant le pH de la solution aqueuse et permet en même temps l'élimination poussée d'impuretés. Des sources intenses de RaE furent obtenues à partir d'une solution à l'équilibre au moyen d'une colonne de résine échangeur d'ions par E. A. Plassmann et L. M. Langer (49). Le rendement semble plus élevé que celui obtenu par séparation électrochimique. Les sources elles-mêmes, obtenues par évaporation d'une goutte de la solution sur un film de Zapon, sont rendues uniformes par l'insuline.

Aucune de ces techniques n'est jusqu'au bout satisfaisante, au moins en ce qui concerne les sources de RaD. Toutes les études faites à basse énergie montrent une selfabsorption importante et une très grande diminution du pouvoir séparateur. Les deux meilleurs spectres à basse énergie (spectre Auger L) furent tracés par A. A. Bashilov et al. (24) qui utilisent comme source une petite feuille d'aluminium exposée à une atmosphère de radon, sans séparation RaD-RaE possible, et par Y. Kobayashi (23) qui évapore le dépôt anodique dans le vide sur un film de Zapon sans séparation non plus.

C'est guidés surtout par cette dernière technique d'évaporation dans le vide, qui donne sans conteste les meilleurs dépôts, que nous avons entrepris nos essais. Mais nous désirions obtenir une source de RaD séparé de RaE pour pouvoir étudier la croissance par la méthode des moindres carrés. Le dépôt anodique de RaD ne donne pas du tout une séparation RaD - RaE importante, le Bi étant entraîné en grande partie à l'anode sous forme de peroxyde, comme cela est d'ailleurs signalé par différents auteurs. Une très bonne séparation fut par contre obtenue lors de l'évaporation dans le vide de ce dépôt anodique en prenant la gouttière-anode comme filament, à température assez basse. Des essais de volatilisation dans le vide poussé du bioxyde de plomb et de l'oxyde de bismuth Bi_2O_3 inactifs, ont permis de préciser les conditions de cette opération. Nous avons disposé dans une petite gouttière de platine placée dans le système d'évaporation un ou deux milligrammes de Pb O_2 . Vers 360°C , le vide étant de $0,1 \text{ micron}$ de mercure, la jauge Penning enregistre un dégagement gazeux correspondant sans doute à une première dissociation du peroxyde ; mais, nous ne percevons de dépôt visible sur une plaque de verre située au-dessus de la gouttière que vers $800-810^\circ \text{C}$. Une expérience identique réalisée avec l'oxyde

de bismuth montre que Bi_2O_3 ne provoque pas de brusque dégagement gazeux, on constate seulement un brunissement de l'oxyde et sa décomposition vers $900-920^\circ \text{C}$, en même temps que le bismuth lui-même s'évapore. Les différents ouvrages déjà anciens que nous avons consultés à ce sujet sont extrêmement contradictoires. Nous n'avons pas trouvé de travaux effectués par les méthodes modernes relatifs à ces dissociations. Cependant, les données ci-dessus montrent qu'il est possible d'évaporer le plomb sans le bismuth.

Le dépôt électrolytique de RaD + RaE s'obtient de la façon suivante : une gouttière du type précédent est placée dans un circuit comprenant un milliampèremètre, une résistance variable, une batterie de 4 volts et une petite lame de platine qui sera cathode, pouvant s'abaisser mécaniquement pour fermer le circuit jusqu'au contact avec l'électrolyte contenu dans la gouttière-anode. Cet électrolyte est la solution nitrique 0,1 N de RaD d'un volume de $0,2 \text{ cm}^3$. Le courant est maintenu à 0,5 mA environ pendant une dizaine d'heures. La gouttière qui a pris alors une très légère teinte brune, est soigneusement lavée avec quelques dixièmes de centimètres cubes d'eau bidistillée, séchée et placée dans le système d'évaporation dans le vide. Nos supports de sources sont constitués par un film de formvar aluminé dans le vide d'épaisseur voisine de $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, supporté par une rondelle d'aluminium. Ce support est placé dans un cache de laiton disposé au-dessus de la gouttière, qui limite la surface à activer à un rectangle de 2 cm de long sur 2,4 ou 6 mm de large. Le vide étant de 0,1 micron de mercure, la gouttière est portée à 800°C environ pendant 5 secondes. La source de RaD obtenue est visible surtout sans doute à cause de la modification thermique du formvar qui est alors très fragile ; l'activité spécifique est assez bonne ainsi qu'en témoigne le tracé du spectre. La qualité de cette séparation RaD - RaE peut s'estimer facilement par tracé de la courbe de croissance du RaE au sein d'une telle source avec un compteur G.M. dont la fenêtre ne permet pas le comptage des électrons du RaD. Les conditions de préparation sont difficilement reproductibles, aussi la séparation obtenue est quelque peu variable. La proportion initiale du RaE peut ne pas dépasser 4 %. Les sources obtenues ont une activité estimée de l'ordre de 3 à 6 microcuries.

II) RAIES DE CONVERSION DU γ DE 46,52 KeV

L'étude des raies de conversion du gamma de 46,52 KeV permet de déterminer la polarité de la transition et son intensité, connaissant la valeur du coefficient de conversion. Cet examen constitue de plus le meilleur critère de la qualité d'une source, en particulier la séparation des deux raies voisines L_I et L_{II} (30, 13 et 30, 81 KeV respectivement).

Des tracés soignés ont été effectués jusqu'ici par :

Y. Kobayashi (23), avec un spectromètre électrostatique (pouvoir séparateur 3,4 %)



Figure 5 : RaD - Raies de conversion du γ de 46,5 KeV.

C.S. Wu et al. (18), avec un spectromètre β à 180° (pouvoir séparateur 0,8 %) A.A. Bashilov et al. (24), avec un "kétron", spectromètre β utilisant un champ magnétique transversal non homogène, décroissant dans une direction (pouvoir séparateur 0,6 %).

Nous avons établi le schéma complet du spectre de conversion avec une source de 2mm de large dans notre spectromètre à double focalisation. Le pouvoir de résolution théorique est, dans ces conditions, de $3,1 \cdot 10^{-3}$. Mesuré à mi-hauteur de la raie L_I , le pouvoir séparateur effectif est alors de $4,7 \cdot 10^{-3}$. Les deux raies L_I et L_{II} sont assez bien séparées, comme le montre la figure 5, de même que les raies N et O. Le pied de L_I , faible, confirme l'assez bonne qualité de la source ; le fond continu est presque négligeable devant l'importance de ces raies. Les mesures de leurs surfaces respectives permettent de dresser le tableau suivant où figurent les valeurs trouvées par différents auteurs. Ces rapports, à défaut des rapports K/L, caractérisent assez bien la multipolarité de la transition.

Nous trouvons : $L_I/L_{II}/L_{III}/M/N/O = 1/0,088/0,0076/0,24/0,06/0,014$

Raies	Cranberg (8)	Kobayashi (23)	Bashilov (24)	Wu (18)	Frilley (50)	Présent travail
L_I	1	1,00	1	1	1	1
L_{II}	0,09		0,15	0,075	0,105	0,088
L_{III}	0,019	0,01	0,0086	0,007	0,001	0,0076
M	0,29	0,23	0,27	0,256	0,329	0,24
N	0,085	0,06	0,058	0,07	0,067	0,06
O	0,021		0,021		0,016	0,014

Il ne semble pas douteux que cette transition soit dipolaire magnétique M_1 . Cependant, nous rencontrons une sensible divergence de ces données expérimentales avec les récents travaux théoriques de Sliv et Band d'une part et Rose d'autre part. Les rapports théoriques de conversion pour une transition dipolaire magnétique de cette énergie sont donnés dans la note de M. Frilley et M.Valadarès (51) et s'établissent comme suit :

Rapports	Rose	Sliv
L_I/L_{II}	10,5	9,3
L_{II}/L_{III}	10,4	11,7

Ces calculs tiennent compte des effets dus aux dimensions nucléaires. Ces mêmes rapports expérimentaux sont représentés dans le tableau suivant :

Rapports	Cranberg	Bashilov	Wu	Frilley	Présent travail
L_I/L_{II}	11,1	6,7	13,3	9,5	11,3
L_{II}/L_{III}	4,7	17,4	10,7	10,5	11,5

Le résultat de Cranberg pour le rapport L_{II}/L_{III} obtenu par une méthode photographique semble à écarter. Ceux de Bashilov, qui paraissent anormaux peuvent s'expliquer peut-être par la difficulté de sa séparation $L_I - L_{II}$ au vu de sa figure 2, et aussi par la présence inexplicable d'une raie qu'il appelle X à 31,9 KeV.

Si nous supposons, ce qui semble très possible, qu'il y ait un léger mélange d'une transition quadrupolaire électrique E_2 , ceci conduit à diminuer très rapidement le rapport L_I/L_{II} , mais certainement pas à l'augmenter. On ne peut donc pas expliquer ainsi la valeur élevée de ce rapport expérimental trouvé par Cranberg, Wu et nous-mêmes. La difficulté de séparer réellement les raies L_I et L_{II} ne paraît pas devoir rendre compte d'une telle différence. Le résultat de Frilley, obtenu par une méthode photographique ne nous semble pas aussi précis que ceux obtenus par comptage. Il est donc possible que l'explication de la divergence avec la valeur théorique réside dans un coefficient de conversion anormal (effets dynamiques de la structure nucléaire sur le coefficient de conversion).

L'examen minutieux de tout le spectre électronique ne permet pas de déceler d'autres raies de conversion. Le gamma de 31 ± 1 KeV, signalé par P.E. Damon et R.P. Edwards (22), ne peut être mis ici en évidence. Ses raies éventuelles L_I et L_{II} , au moins, se trouveraient dans la fin du groupe Auger L. De toute façon, si elles existent, elles sont vraiment d'intensité extrêmement faible.

Il est ensuite essentiel de déterminer l'importance de ces électrons de conversion par rapport au spectre β primaire. Cette comparaison ne peut guère s'effectuer qu'avec le spectre β du RaE, une fois l'équilibre établi, car la plus grande partie du spectre β primaire du RaD est masqué par le groupe Auger L et nous ignorons de plus sa complexité. Mais si la source est fine, les taux de comptage sur ce spectre du RaE à l'équilibre sont très bas; avec notre source la plus fine, le taux de comptage au sommet de la raie L_I est 500 fois plus élevé qu'au maximum du spectre du RaE, c'est-à-dire vers 210 KeV. De plus, notre spectromètre ne permet pas le tracé complet du spectre, l'énergie maximum d'utilisation normale étant voisine de 500 KeV. Nous avons donc fait cette comparaison avec une source plus large (6 mm) qui a permis une meilleure statistique sur les taux de comptage, au détriment (sans inconvénient) du pouvoir séparateur (0,9 %), en normalisant sur cette zone étudiée (70 à 500 KeV) le spectre du RaE fourni par E. A. Plassmann et L. M. Langer.

Nous avons entrepris à ce sujet un calcul, d'après la formule donnée par ces auteurs, du facteur de forme C pour cette transition une fois interdite afin de tracer avec nos points expérimentaux un segment de droite de Kurie. Nous voulions vérifier que nous obtenions bien une droite correcte indiquant, par extrapolation, une énergie maximum W_0 voisine de la valeur admise (3,26 en unités m_0c^2), ce qui permettait de conclure entre autres, à l'excellente efficacité de notre compteur jusque vers 500 KeV. L'expression de C est une fonction des rapports ξ_1 et η_1 des éléments de matrices nucléaires définissant les couplages S et T, (Le travail de Plassmann et Langer, effectué à une époque où la non-conservation de la parité n'avait pas été mise en évidence, s'appuyait évidemment sur les interactions alors admises). Ces rapports, difficilement calculables théoriquement, jouent dans cette formule le rôle de paramètres variables et le meilleur ajustement obtenu avec la courbe expérimentale en constitue en quelque sorte la détermination. Nous avons adopté en conformité avec les conclusions de Plassmann les valeurs 0,2 et 2,2 pour les termes ξ_1 et x respectivement, x étant défini par l'expression :

$$x = \frac{\alpha Z}{2R} \left(\eta_1 - 2 \frac{1 + \xi_1}{1 + S} \right) \text{ où } S = (1 - \alpha^2 Z^2)^{1/2}$$

Tous coefficients effectués, cette formule devient :

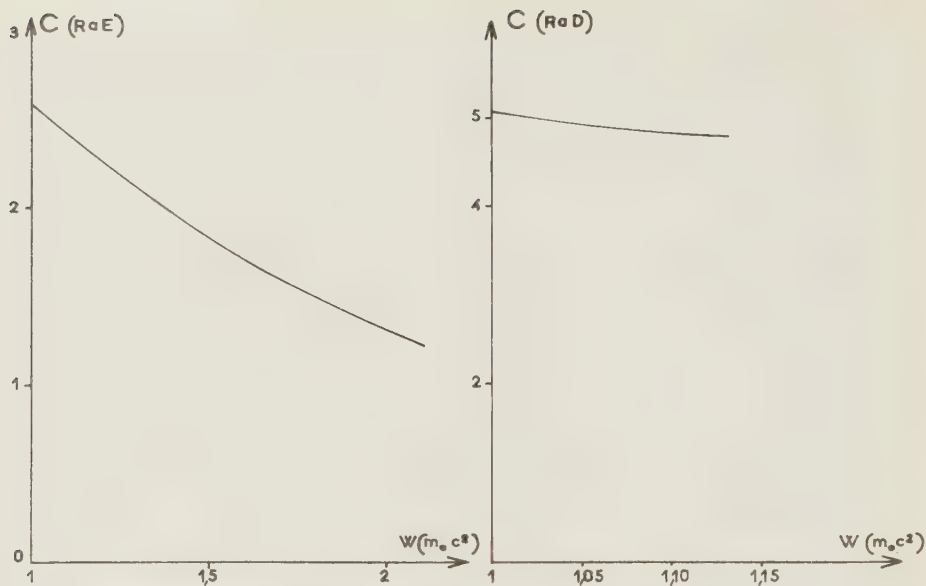
$$C = 2,77 + 0,45 W^2 - \frac{W^2 - 0,624}{4,618 W} (6,39 + 1,28 W) - 0,20 L_1$$

La figure 6 représente ces variations, nous avons négligé le dernier terme dont l'importance est très faible. La figure suivante (7) représente la droite de Kurie obtenue avec les barres d'erreur, elle paraît satisfaisante.

Malgré tout l'arbitraire que cela comporte, cette formule fut supposée encore valable en-dessous de 80 KeV et le spectre ainsi extrapolé fut tracé dans son entier. Nous avons évidemment vérifié que les points expérimentaux trouvés dans la zone de basse énergie par la méthode de croissance, exposée plus loin, ne s'en écartaient pas suffisamment pour produire sur l'ensemble du spectre une erreur sensible.

Ces calculs étaient effectués lorsque nous parvint l'étude théorique du spectre du RaE faite par R. Nataf (52). Elle conduit à une valeur un peu différente des deux paramètres ξ_1 et x, soit respectivement 0,7 et 2,0. Cette variation n'a cependant aucune influence pratique sur l'allure de la courbe donnant le facteur d'interdiction C dans l'intervalle d'énergie qui nous occupe, car l'ajustement des paramètres est en fait assez imprécis.

Finalement, le rapport de l'aire totale sous les raies de conversion à l'aire sous ce spectre β nucléaire donne le résultat suivant : 78 électrons de conversion sont émis pour 100 désintégrations, dont 60 électrons des couches L. Par rapport à l'ensemble de nos sources, cette valeur est plutôt une valeur minimum.



Figures 6 et 9 : Facteurs de forme C pour les transitions
 $RaE \rightarrow RaF$ et $RaD \rightarrow RaE$ -

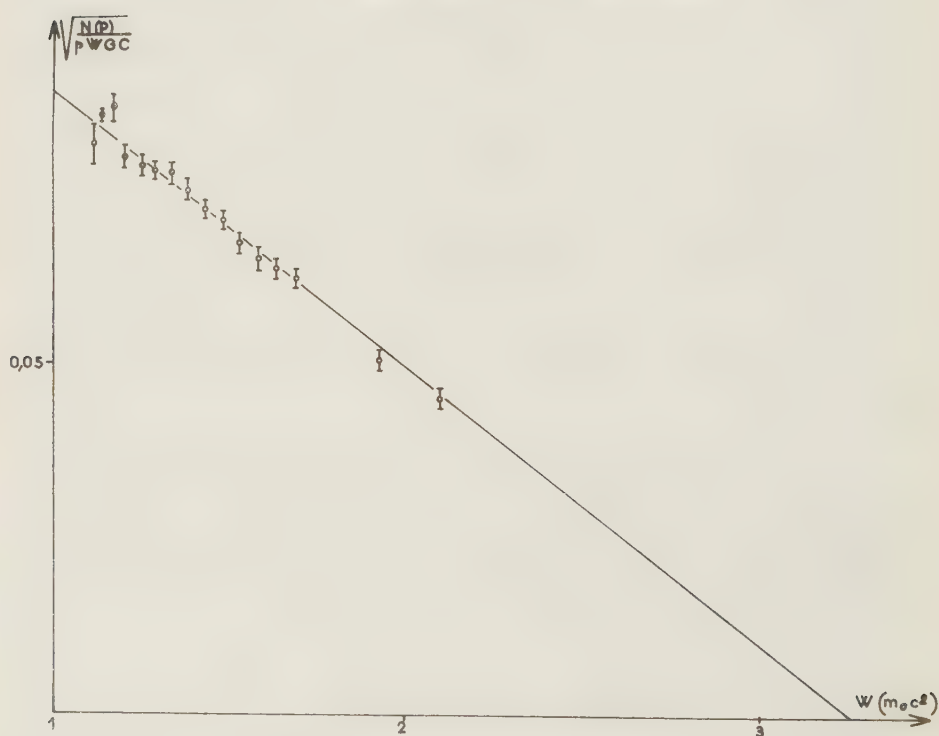


Figure 7 : Droite de Kurie pour le spectre du RaE

Les différents résultats trouvés jusqu'ici figurent dans le tableau suivant :

Cranberg (1950)	74 $\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix}$ 5	Si nous prenons la dernière valeur déterminée par Y. Krause (54) du rayonnement γ de 46,52 KeV, soit $4,05 \pm 0,08 \gamma$ émis pour 100 désintégrations (en accord avec l'ensemble des précédentes déterminations), nous trouvons que le niveau excité de 46,52 KeV du
Butt et Brodie (1951)	59 $\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix}$ 5	
Bashilov (1953)	58 $\pm$ 3	
Wu (1953)	85 $\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix}$ 5	
Stammers et Ross (1956)(53)	81 $\begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix}$ 4	
Présent travail	78 $\pm$ 5	

RaE est donc alimenté dans au moins 82 % des désintégrations du RaD.

Le résultat de Y. Krause donne les coefficients de conversion L suivants, basés sur nos mesures des raies L :

$$\begin{aligned} \alpha_{L_I} &= 13,52 \\ \alpha_{L_{II}} &= 1,19 \\ \alpha_{L_{III}} &= 0,10 \end{aligned}$$

soit un coefficient de conversion L global de 14,81.

On peut les comparer aux coefficients théoriques pour une transition M_1 pure, tirés des tables de Rose :

$$\begin{aligned} \alpha_{L_I} &= 11,9 \\ \alpha_{L_{II}} &= 1,15 \\ \alpha_{L_{III}} &= 0,11 \end{aligned}$$

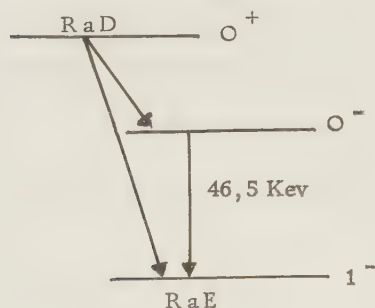
soit un coefficient théorique global de 13,2.

III) TRANSITION 61 KeV

Le γ de 46,52 KeV ne représente pas l'unique voie de désintégration, la ou les transitions complémentaires demeurent à préciser. Il semble bien cependant que l'hypothèse de γ en cascades, longtemps émise, doive être, à la suite des travaux de Wu et surtout G.T. Ewan et M.A.S. Ross (55), et aussi J. Hugues (cité par R. Nataf), abandonnée. Du moins leur importance doit-elle être fort minimisée ; nous n'avons pu nous-mêmes, nous l'avons dit, mettre en évidence aucune raie de conversion correspondante.

Il ne reste plus alors que la possibilité d'une transition directe vers l'état fondamental du RaE. Un tel spectre a été supposé par Wu ($8 \pm 5 \%$). Théoriquement d'ailleurs, cette transition a une probabilité non négligeable. Le spin

du niveau fondamental du RaE est 1^- , il a été déterminé directement par K.F. Smith ; il s'ensuit que celui de l'état excité de 46,5 KeV est 0^- ou 2^- , puisque la transition est dipolaire magnétique. Or le log ft de la transition β alimentant ce niveau excité est de l'ordre de 6, le 2^- est donc à écarter. Le schéma



étant le suivant, nous voyons que les deux transitions β possibles doivent appartenir au même groupe, c'est-à-dire à celui des transitions une fois interdites

$$(\Delta J = 0, 1 \text{ oui}).$$

Nos expériences étaient en cours lorsque parut l'article de W. Stammers et M. A. S. Ross (53). Par l'emploi d'émulsions nucléaires, ces auteurs concluent à l'existence de cette transition directe dans la proportion importante de $15,5 \pm 3,5\%$. Leur méthode consiste à analyser les trajectoires d'électrons du RaD par comptages

de grains. La superposition du spectre β de 16 KeV et des électrons de conversion est une gêne considérable. La comparaison de l'histogramme des trajectoires en fonction du nombre de grains à la forme attendue montre un excès de trajectoires de quelques grains (2 à 5) que les auteurs attribuent à la transition directe. Le nombre maximum de grains étant de 30, on voit que la transition directe n'est identifiée que par sa partie la moins énergétique, où elle est superposée à l'autre transition. Il était donc de toute façon très intéressant de la mettre en évidence d'une manière moins détournée. Notre méthode, constitue une confirmation de leur résultat.

Méthode employée : L'examen d'un tracé complet du spectre β et électronique du RaD suggère la possibilité d'une étude détaillée, directe, au spectromètre, d'un spectre β primaire d'énergie maximum W_0 voisine de 61-64 KeV, dans les trois zones :

- entre 18 KeV (limite extrême du spectre continu de faible énergie et 25 KeV environ (la raie L_I est à 30,1 KeV)
- entre les raies de conversion L_{III} et M, soit entre 34 et 40 KeV
- après la raie O de conversion, soit après 46 KeV

Ce travail est soumis aux conditions suivantes :

a) Il faut pouvoir séparer d'un taux de comptage donné la proportion venant du RaE dont le spectre, bien que faible dans cette région, ne l'est pas comparativement.

b) Il est nécessaire que le pied des raies soit très faible pour ne pas fausser complètement les mesures. Cette condition semble réalisée pour nos sources. Le fait que la zone d'étude la plus vaste est précisément celle qui est située en-dessous de la raie L_I la plus intense constitue d'ailleurs un facteur favorable. L'effet dû au pied de la raie peut se déceler très vite. La zone d'étude

parfaite de ce point de vue est évidemment celle qui se trouve au delà de 46 KeV. Malheureusement, nous sommes près de la fin du spectre β étudié et les comptages sont très faibles.

Il ne peut être question de résoudre cette première condition, c'est-à-dire obtenir la proportion du RaD seul dans une tranche d'impulsion donnée, par soustraction, au taux de comptage global d'une source à l'équilibre, de la contribution du RaE obtenue par extrapolation du spectre de Plassmann et Langer. Cette extrapolation aurait pu s'opérer, comme nous l'avons fait dans la précédente section, en étendant à cette région de basse énergie, l'expression du facteur de forme C. Il est en effet très probable que le spectre global dans cette région de basse énergie soit légèrement déformé par la selfabsorption et la rétrodiffusion ; l'application d'une telle méthode, en plus de son incertitude de principe, ne ferait ici qu'exagérer cette cause d'erreur éventuelle, par la soustraction d'un spectre théorique au spectre expérimental.

La possibilité d'obtenir le spectre du RaD seul fut offerte par l'application de la méthode des moindres carrés aux comptages effectués en cours de croissance du RaE au sein d'une source de RaD aussi pur que possible à l'origine. L'obtention de telles sources qui conditionnent le succès de l'opération, fut réalisée par le processus décrit d'évaporation dans le vide à 800-810° C du dépôt anodique. Si n_i est le taux de comptage au temps t_i et si N_D et N_E représentent les taux d'équilibre relatifs à RaD et RaE, nous avons :

$$n_i = N_D + N_E (1 - e^{-\lambda(t_i - t_0)})$$
, λ étant la constante radioactive du RaE. Nous avons vu que la méthode des moindres carrés, appliquée à tous les comptages réalisés au cours du temps dans la même tranche d'impulsion donne les expressions suivantes :

$$N_E = e^{-\lambda t_0} \frac{M \sum b_i n_i - \sum b_i \sum n_i}{(\sum b_i)^2 - M \sum b_i^2} \quad \text{et} \quad N_D + N_E = \frac{\sum b_i \sum b_i n_i - \sum n_i \sum b_i^2}{(\sum b_i)^2 - M \sum b_i^2}$$

en désignant par b_i le terme $e^{-\lambda t_i}$ et par M le nombre total des comptages. Le temps origine t_0 se détermine en appliquant la méthode à une tranche d'impulsion dans laquelle nous savons que N_D est nul, nous obtenons alors :

$$e^{\lambda t_0} = \frac{\sum b_i \sum n_i - M \sum b_i n_i}{\sum n_i \sum b_i^2 - \sum b_i \sum b_i n_i}$$

Pour toutes nos sources, ce point choisi est situé à 80 mA, soit 936 Bq (71,98 KeV).

Le calcul d'erreur mené pour chaque détermination montre la validité de la méthode ; l'incertitude sur les différentes valeurs est cependant très certainement forcée, en particulier celle sur N_D , considérée comme la somme des incertitudes sur les deux résultats fournis, soit $(N_D + N_E)$ d'une part et N_E d'autre part. La durée d'une expérience sur une source est de l'ordre de un mois et, pendant les premiers jours, les comptages n'étaient interrompus que pendant

quelques heures de nuit. Le temps total de comptage effectif par source dépasse 50 heures.

Nous exposons ici les résultats fournis par l'étude de deux sources, l'une (A) est assez active ; son dépôt, nettement visible, a 4 mm. de large. L'autre (B), beaucoup moins active (environ 7 fois moins) a par contre un dépôt de 6 mm. de large. Ces différences doivent mettre en évidence l'effet dû à la self-absorption ou à la rétrodiffusion. Avec la source (A), en plus du point de référence à 71,98 KeV servant à la normalisation et à la détermination du temps origine t_0 , nous n'avons étudié qu'un seul point situé dans la région la plus intéressante, au delà de la raie 0 de conversion du γ de 46,5 KeV, à 48,54 KeV. Les résultats sont les suivants : (figure 8)

- point de référence $N_E = 123,7 \pm 0,95$

- point étudié $N_E + N_D = 104,4 \pm 1$ $N_E = 89,5 \pm 2$

Avec la source (B), nous avons choisi trois points dans chacune des trois régions et obtenu :

- point de référence $N_E = 25,4 \pm 0,5$

- premier point, à 20,81 KeV $N_E + N_D = 30,5 \pm 0,8$ $N_E = 9,9 \pm 2$

- deuxième point, à 36,45 KeV $N_E + N_D = 29,6 \pm 0,8$ $N_E = 15,1 \pm 2$

- troisième point, à 49,99 KeV $N_E + N_D = 20 \pm 7$ $N_E = 18 \pm 3$

Nous déterminons à l'aide des points expérimentaux ainsi obtenus l'allure du spectre du RaE à basse énergie. Cette allure générale est conforme à l'aspect attendu ; la confrontation de ce spectre expérimental au spectre théorique tracé précédemment par utilisation du facteur de forme de Plassmann et Langer conduit à un accord satisfaisant ; les barres d'erreur des points expérimentaux recouvrent très bien le spectre théorique. On doit cependant remarquer que le spectre expérimental se trouve toujours situé au-dessus, sans doute à cause de sa déformation due à l'épaisseur de la source.

Lorsqu'ensuite l'équilibre radio-actif est atteint, nous établissons soigneusement le tracé du spectre dans les trois régions étudiées, puis par soustraction de la contribution due au RaE, nous déduisons les taux de comptages dus au RaD seul. A l'aide de ces valeurs, un diagramme de Kurie est tracé, présentant deux buts, d'abord déterminer l'énergie maximum peu précise du spectre mou (15, 18 ou 25 KeV), mais surtout évaluer, par reconstitution totale du spectre, l'intensité de la transition. Pour l'établissement de ce diagramme, nous devons porter en ordonnées l'expression $\left[\frac{N(p)}{p^2 F C} \right]^{1/2}$, F étant la fonction de Fermi et C le facteur de forme éventuel. L'écriture de ces deux termes entraîne les difficultés suivantes :

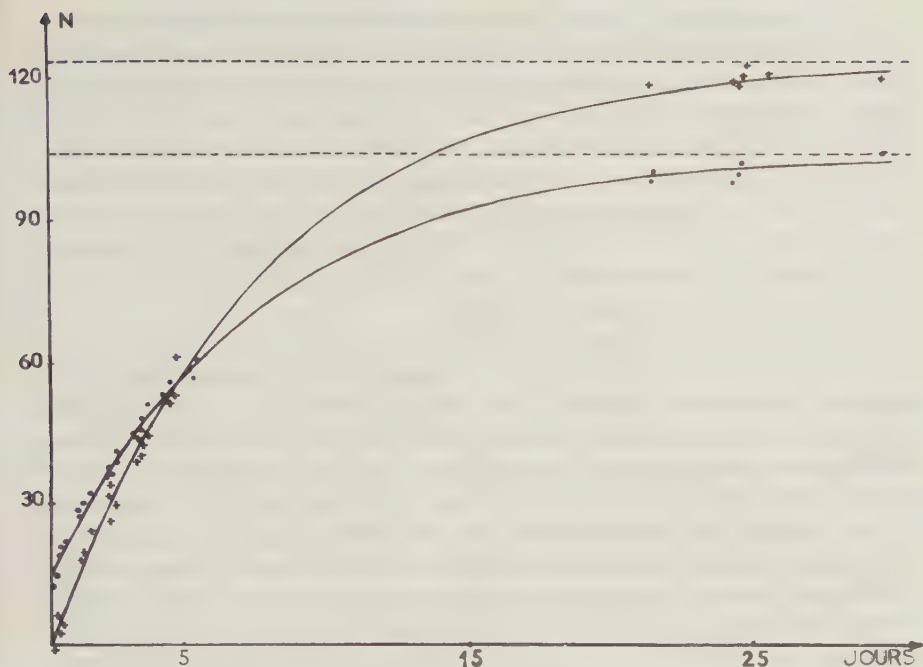


Figure 8 - Exemple de la croissance du RaE, au sein d'une source de RaD en deux points différents du spectre.

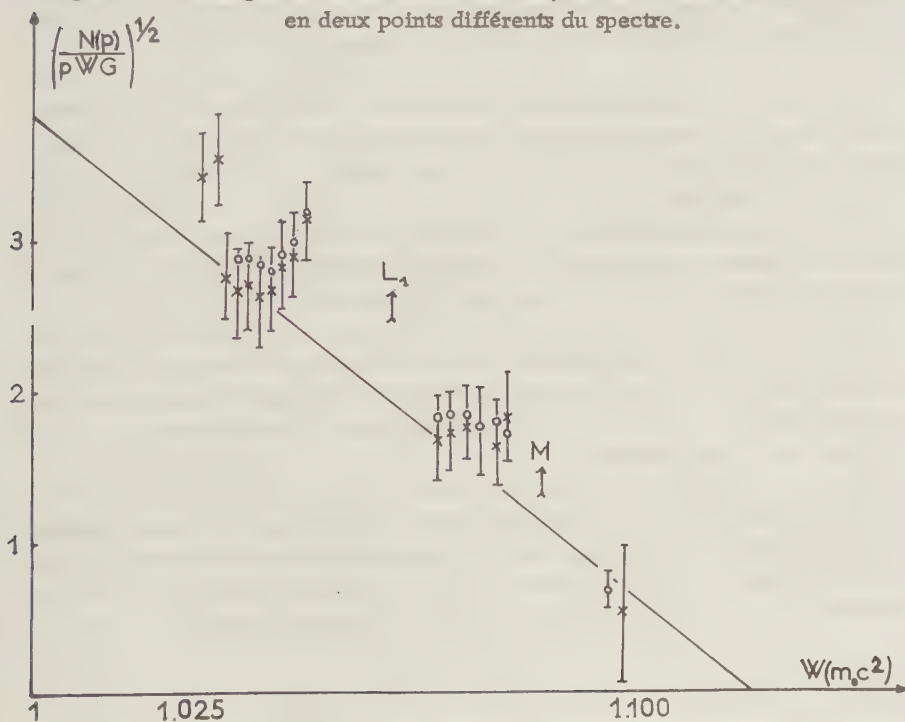


Figure 10 - Droite de Kurie correspondant à la transition β directe RaD $\rightarrow$ RaE

- la fonction de Fermi, telle qu'elle se trouve tabulée habituellement, ne comprend pas la correction d'écran qui peut devenir sensible pour des noyaux lourds. Cette correction se trouve établie précisément dans notre domaine d'étude par S. Flügge et W. Jekeli (66). Ce facteur de correction varie de 0,93 à 0,95 environ entre 0 et 15 KeV, puis seulement de 0,95 à 0,96 entre 15 et 60 KeV. L'allure de notre diagramme sera donc très peu modifiée, nos premiers comptages s'effectuant au-dessus de 15 KeV. Nous négligeons donc, vu la précision de nos mesures, cette correction. Par ce fait, la valeur trouvée de l'intensité de la transition par reconstitution du spectre sera une valeur maximum, à cause de la fraction à basse énergie surestimée.

- le facteur de forme C doit correspondre à une transition une fois interdite, comme nous l'avons vu. Mais cette transition ($0^+ \rightarrow 1^-$) est du même type que la transition du RaE ($1^- \rightarrow 0^+$), il s'ensuit que les termes des éléments de matrice ne doivent pas être très différents (Nataf (52) ; Stammers et Ross (53)) donc nous supposons l'expression de ce facteur C donnée par E. A. Plassmann et L. M. Langer (49) ou Nataf encore valable, malgré la grande différence d'énergie des transitions. A cause précisément de cette différence, nous constatons alors que ce facteur de forme varie très peu sur toute l'étendue du spectre (fig. 9). Aussi nous négligeons sa variation et supposons le spectre de forme permise. Ceci peut se justifier par l'étude du spectre mou de plus basse énergie qui représente lui aussi une transition du même type et que tous les auteurs ont trouvé s'identifier avec un spectre de forme permise (G.M. Insch, J.G. Balfour et S.C. Curran (45), Jaffé et Cohen (56), E. Huster (57)).

Avec ces simplifications, nous traçons alors le diagramme représenté sur la figure 10, où sont reportés les résultats déduits des deux sources (A) et (B) ; nous sommes conduits aux constatations suivantes :

L'énergie maximum du spectre W_0 est trouvée d'environ 61 KeV, ce qui entraîne pour le spectre mou une énergie maximum de 15 KeV environ, en accord avec les conclusions de Jaffé et Cohen (56).

L'effet visible dû aux pieds des raies introduit peut-être une erreur difficile à évaluer. Elle doit cependant être très faible puisqu'on assiste bien dans les deux régions intéressées, surtout la première, à la remontée normale des points vers les basses énergies.

Vers 15,4 KeV, on constate déjà une montée brusque. On met peut-être de cette façon en évidence une raie de conversion très peu intense du gamma de 31 KeV signalé par P.E. Damon et R.P. Edwards (22). Mais ce doit être plus vraisemblablement la fin du spectre mou ou du groupe Auger L_1 .

Enfin, nous reconstituons le spectre entier à partir de cette droite de Kurie et le comparons avec le spectre du RaE tracé, on l'a vu, en utilisant le facteur de forme C de Plassmann. Le rapport des aires donne l'intensité relative de la transition. Nous trouvons $0,19 \pm 0,04$. La transition directe à l'état fondamental du RaE interviendrait donc dans $19 \pm 4\%$ des désintégrations. A cause de la perturbation due aux pieds des raies et à la non-corrrection d'écran, cette valeur peut sans doute être considérée comme maximum.

IV) ELECTRONS AUGER L

La bonne qualité de nos sources, jointe aux caractéristiques du spectromètre, a permis une étude assez précise du spectre électronique de basse énergie, en particulier la région des électrons Auger L. L'emploi d'une postaccélération de 1500 volts et d'une fenêtre de compteur G.M. dont le cut-off mesuré se situe vers 1,5 KeV a rendu possible ce tracé sans aucune correction jusque vers 3,5 KeV. Pour que la source soit aussi fine que possible tout en conservant une activité globale raisonnable, la volatilisation dans le vide du dépôt anodique fut opérée sur une surface de 6 mm de large. Le pouvoir séparateur effectif obtenu ainsi, mesuré sur la principale raie Auger L_{III} est de $1,7 \cdot 10^{-2}$, supérieur à celui obtenu dans cette région avec des sources de 2 mm de large seulement, ce qui confirme l'influence de l'épaisseur du dépôt, facteur que nous vérifierons encore dans le cas du Ms Th₁. Le début du groupe très important des électrons Auger M fut aussi tracé, en utilisant les corrections d'absorption de fenêtre du compteur. Sa structure générale est simplement dessinée sans que l'on puisse en tirer aucune donnée quantitative.

Nous nous sommes proposés une étude du groupe Auger L accompagnant la désintégration du RaD, en particulier la détermination des rendements Auger dans les sous-couches L, soit a_1 , a_2 et a_3 , ainsi que les rendements Coster-Kronig f_{12} , f_{13} de transfert de l'ionisation de la couche 1 aux couches 2 et 3. On en déduit les rendements de fluorescence $\bar{\omega}_1$, $\bar{\omega}_2$ et $\bar{\omega}_3$. Ce calcul ne peut se faire que moyennant certaines hypothèses que nous allons préciser, et aussi grâce aux résultats précédents obtenus aussi bien dans l'étude des raies de conversion du seul γ de 46,52 KeV que dans l'estimation de l'intensité des deux branchements β nucléaires.

Ce tracé effectué soigneusement sur une source en équilibre (fig. 11) met en évidence différents pics assez nettement détachés que nous avons classés arbitrairement en treize groupes. Leur identification se fait par comparaison des énergies observées avec les énergies calculées de chaque raie. Ce calcul s'effectue par la formule approchée :

$$E_{LBC} = E_L^Z - E_B^Z - E_C^{Z+1}$$

Cette identification nous est grandement facilitée par les études précédentes faites dans le cas du RaD par Y. Kobayashi (23) et par M. A. S. Ross et al. (38) d'après le spectre tracé par Bashilov et al (24) et aussi dans le cas du dépôt actif du thoron par A. Moussa et J. B. Bellicard (58), par Burdé et Cohen (59) et plus récemment par Z. Sujkowski et H. Slätis (60).

Le tableau suivant expose l'interprétation donnée à chacun de ces groupes. L'accord est assez bon, d'une part entre les énergies trouvées et les énergies calculées, d'autre part avec l'ensemble des travaux précédents. Un seul point de divergence importante doit cependant être signalé, c'est l'attribution $L_{III} M_{IV} N_{IV,V}$ d'une raie complexe à 10,2 KeV faite par Burdé et Cohen (qu'ils appellent A'7) que nous pensons plutôt appartenir au groupe L_{II} et être $L_{II} M_{IV} M_{IV,V}$. La dernière étude de Z. Sujkowski et H. Slätis confirmerait ce dernier point de vue.

Avant de tenter une détermination de l'intensité relative des trois sous-groupes L, nous pouvons par comparaison de l'aire totale sous le groupe entier avec l'aire des raies L de conversion évaluer le rendement de fluorescence moyen. Ceci nécessite la connaissance précise du fond continu important. Il se compose de trois spectres :

- le spectre β mou d'énergie maximum de 15 KeV, représentant au moins 81 % des désintégrations
- le spectre β direct alimentant l'état fondamental du RaE, d'énergie maximum de 61 KeV, précédemment étudié
- enfin, le spectre β du RaE, peu important dans cette région.

Le premier est de très loin dominant dans cette zone. Nous disposons d'ailleurs d'une zone d'observation directe de ces trois spectres superposés entre 4 et 5,4 KeV, c'est-à-dire entre les Auger M et les Auger L ; cette plage d'étude constituera un excellent contrôle de la validité du tracé des spectres.

Le spectre du RaE nous est connu par les déterminations précédentes. Nous avons vu qu'on pouvait pour les basses énergies admettre l'expression du facteur de forme C de Plassmann et Langer (49) pour sa construction. Le tracé expérimental obtenu en cours de croissance montre un accord suffisant. De toute façon, son importance est très faible : par exemple, au milieu du groupe Auger L, à 8 KeV, ce spectre a une ordonnée dépassant légèrement les 3 % de l'ordonnée du fond continu global.

Le spectre de 64 KeV a été étudié. Nous en avons fait le tracé complet à l'aide de la droite de Kurie trouvée. Sa construction est effectuée en supposant donc qu'il intervient pour 19 % des désintégrations, que sa forme est permise et que la correction d'écran est encore négligeable dans cette région. Le spectre de 15 KeV enfin est construit également en supposant sa forme permise, ce qui est conforme, nous l'avons dit, aux conclusions des précédents auteurs. Son intensité est calculée pour atteindre 81 % des désintégrations.

Interprétation et énergie des raies Auger L

Appellation	Energie observée (KeV)	Identification	Energie calculée (KeV)
1	a 6,10	$L_{III}M_I M_{III}$	6,129
	b 6,40	$L_{III}M_I M_{III}$	6,430
2	6,81	$L_{III}M_I M_V$	6,739
		$L_{III}M_{II} M_{IV}$	6,930
3	7,40	$L_{III}M_{II} M_{IV}$	7,447
		$L_{III}M_{II} M_V$	7,557
4	7,95	$L_{III}M_{IV} M_{IV}$	7,939
		$L_{III}M_{IV} M_V$	8,049
5	8,58	$L_{III}M_V M_V$	8,157
		$L_{II}M_I M_{III}$	8,425
6	9,15	$L_{II}M_I M_{III}$	8,726
		$L_{II}M_I M_{III}$	9,102
7	a 9,29	$L_{II}M_{II} M_{III}$	9,226
	b 9,48	$L_{II}M_{II} M_{III}$	9,245
8	a 9,59	$L_{III}M_I N_{VI, VII} - L_{III}M_{III} N_{III}$	9,549-9,525
	b 9,67	$L_{II}M_I M_{IV}$	9,597
9	10,20	$L_{II}M_{II} M_{IV}$	9,743
		$L_{II}M_{IV} M_{IV}$	10,235
10	10,55	$L_{II}M_{IV} M_V$	10,345
		$L_{III}M_{IV} N_{VI, VII}$	10,548
11	11,020	$L_{III}M_V N_{VI, VII}$	10,655
		$L_{II}M_{IV} M_V$	11,020
12	11,247	$L_{II}M_I N_V$	11,247
		$L_{II}M_I N_{VI, VII}$	11,534
13	a 12,18	$L_{II}M_V N_I$	12,146
	b 12,24	$L_{III}N_I N_{VI, VII}$	12,235
14	a 12,844	$L_{II}M_{IV} N_{VI, VII}$	12,844
	b 13,04	$L_{II}M_{II} N_{VI, VII}$	13,027

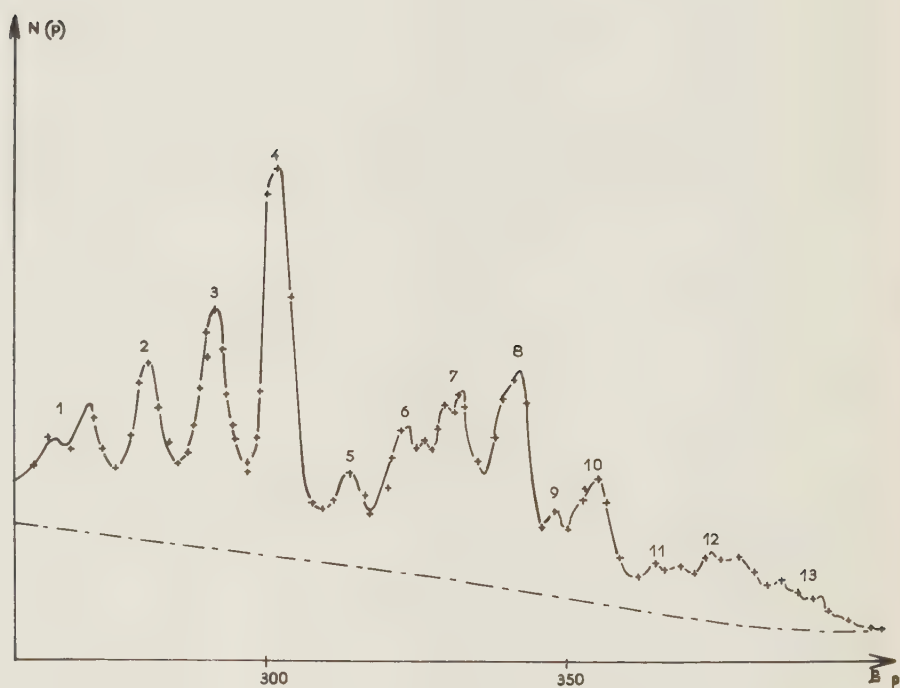


Figure 11 - Electrons Auger L consécutifs à la désintégration du RaD, l'équilibre RaD - RaE étant établi. En pointillé est représenté l'ensemble des 2 spectres β du RaD et du spectre β du RaE.

Le fond continu est alors reporté en faisant la somme de ces trois spectres. Nous constatons que le tracé expérimental dans la zone de contrôle de 4 à 5,4 KeV est assez nettement au-dessus de ce fond calculé. Il faudrait pour expliquer cela admettre un aplatissement du groupe Auger L avec un pied très important à basse énergie, ce que ne semble pas indiquer la structure générale. Le fait que notre valeur de 19 % pour l'intensité du spectre direct ait pour diverses raisons été jugée maximum nous conduit à modifier légèrement les intensités relatives admises pour les deux spectres. Un meilleur accord avec la zone de contrôle précédente est obtenu en prenant 85 % pour l'intensité du spectre mou. Cette valeur, en excellent accord avec celle de Stanners et Ross (53) ne sort pas de la limite possible de nos erreurs. Nous l'adoptons donc pour le tracé du fond continu. Il est vrai que négliger l'effet d'écran pour un spectre aussi peu énergétique peut bien sans doute expliquer le désaccord constaté.

Nous mesurons alors l'aire attribuée aux électrons Auger L seuls et la comparons d'abord à l'aire représentant le spectre total du RaE à l'équilibre, ceci nous donne le nombre A d'électrons Auger L par désintégration, nous trouvons $0,38 \pm 0,04$. Or le nombre I d'électrons de conversion L émis par désintégration a été évalué dans nos mesures à $0,60 \pm 0,04$. Nous en tirons immédiatement le nombre F de quanta XL émis par désintégration, soit $0,22 \pm 0,03$. La majeure partie des erreurs sur A et sur I est due à l'approximation sur la surface du spectre total, d'où une compensation dans l'erreur sur F.

Ce nombre F a fait l'objet de certaines déterminations directes que nous représentons dans le tableau suivant :

Gray (19) 1932	0,30
Stahel (61) 1935	0,252
Tsien (10) 1944	0,27
Damon (22) 1954	$0,19 \pm 0,03$
Présent travail	0,22

Les mesures anciennes, où les photons sont sélectionnés par absorption, n'ont qu'une faible précision.

Nous obtenons ensuite le rendement de fluorescence moyen $\overline{\omega}_L$, représenté par $\frac{F}{I}$, soit $0,37 \pm 0,04$. Cette valeur est comparée avec les résultats antérieurs.

Les termes calculés sont évalués à partir de la valeur F obtenue par R. E. Damon et R. P. Edwards (22).

Auteurs	I	F/I	
		calculé	mesuré
Lay (62) (1934)			0,40
Kinsey (63) (1948)			0,47
Cranberg (8) (1950)	0,54	0,35	
Butt (15) (1951)	$0,467 \pm 0,004$	0,40	
Wu (18) (1953)	0,64	0,30	
Bashilov (13) (1953)	$0,45 \pm 0,02$	0,42	
Présent travail	$0,60 \pm 0,04$	0,32	$0,37 \pm 0,04$

Kinsey obtient la valeur 0,32 par l'analyse des largeurs des niveaux L. Les mesures du nombre de photons L émis par le Th C ($\text{Th C} \rightarrow \text{Th C}^m$) l'amènent à élever cette valeur à 0,47.

La validité de cette procédure semble douteuse, ainsi que l'ont déjà fait remarquer R. E. Damon et R. P. Edwards (22). L'analyse du travail de Kinsey montre que la marge d'erreur va, en fait, de 0,30 à 0,50. Les valeurs très basses trouvées par Butt et par Bashilov pour le nombre I viennent peut-être d'une surestimation de la correction de backscattering pour le premier et d'une trop faible évaluation du pied des raies, qui paraît important, dans le cas du second. Quoi qu'il en soit, l'accord entre ces diverses données n'est pas très satisfaisant. La technique de préparation des sources joue ici un rôle tout à fait prépondérant.

Rendements Auger partiels : L'identification des raies Auger L faite précédemment peut nous permettre, moyennant certaines séparations délicates, la détermination des rendements partiels Auger a_1 , a_2 , a_3 et de fluorescence $\bar{\omega}_1$, $\bar{\omega}_2$, $\bar{\omega}_3$, ainsi que les rendements Coster-Kronig f_{12} , f_{13} , f_{23} .

Nous avons vu, dans la section précédente, que ces déterminations entraînent la connaissance des rapports $1/C_2/C_3$, $1/F_2/F_3$ et $1/A_2/A_3$ qui sont respectivement, selon les notations de M. A. S. Ross, les nombres relatifs d'ionisations primaires dans les trois niveaux, de quanta XL et d'électrons Auger L produits.

L'étude antérieure des raies de conversion L a fixé les rapports de conversion $L_I/L_{II}/L_{III}$ aux valeurs suivantes : $1/0,088/0,008$, soit donc : $C_2 = 0,088$ et $C_3 = 0,008$. D'autre part, n'ayant pas étudié le rayonnement XL émis lors de la désintégration du RaD, nous avons admis les conclusions faites à ce sujet par Ross et al (38) qui rassemblent les précédents travaux de Frilley (64), Ewan et Cochran. De l'intensité relative donnée pour les raies $L\alpha$, $L\beta$ et $L\gamma$, M. A. S. Ross déduit les intensités correspondantes des quanta X émis à partir des trois niveaux L, par comparaison avec les spectres de Ta, W et U. Il donne les résultats représentés sur le tableau suivant :

Intensité relative des rayonnements XL

Niveaux	Frilley	Ewan	Cochran
L_I	94	115	91
L_{II}	78	82	75
L_{III}	211	207	210

$$F_2 = 0,79 \pm 0,06$$

d'où l'on tire :

$$F_3 = 2,12 \pm 0,3$$

La détermination enfin du dernier rapport $1/A_2/A_3$ résulte de l'analyse détaillée du spectre Auger L. L'allure de ce spectre permet sa division en plusieurs zones relativement séparées que nous représentons ci-dessous. Entre parenthèses, figure l'estimation assez aléatoire de l'intensité relative à chaque groupe composant ces zones.

Zone	Composition	Intensité relative
5,3 à 8,3 KeV	$L_{III}MM$ + petite partie $L_{II}MM$	49 $\begin{cases} (45) \\ (4) \end{cases}$
8,3 à 10,3 KeV	$L_{II}MM$ + partie $L_I MM$ + partie $L_{III}MN$	34 $\begin{cases} (16) \\ (10) \\ (8) \end{cases}$
10,3 à 11,3 KeV	partie $L_{III}MN$ + partie $L_I MM$ + partie $L_I MN$	4 $\begin{cases} (3) \\ (1) \end{cases}$
11,3 à 14 KeV	$L_{II}MN$ $L_I MN$ $L_{III}NN$	8 $\begin{cases} (4) \\ (2) \\ (2) \end{cases}$

Ce qui conduit aux résultats suivants, représentant l'intensité relative des électrons Auger originaires des différentes couches :

$L_{III}MM$	45	$L_{III}MN$	12	$L_{III}NN$	2
$L_{II}MM$	20	$L_I MN$	5	$L_I NN$	
$L_I MM$	13	$L_I MN$	2	$L_I NN$	?

Ces valeurs sont en assez bon accord avec l'analyse effectuée par Ross et al. (38) à partir des travaux de Y. Kobayashi et de Bashilov. La comparaison de notre spectre Auger avec ceux tracés par ces deux auteurs montre d'ailleurs une excellente similitude, sauf cependant au-dessous de 8 KeV où un affaïssement plus prononcé indiquerait sans doute pour leurs spectres une absorption sensible insuffisamment corrigée. Cette divergence se répercute donc sur les valeur correspondant aux électrons Auger $L_{III}MM$, dont nous trouvons une intensité plus élevée de 7 % par rapport aux résultats de M. A. S. Ross.

De cette analyse nous tirons les valeurs de A_2 et A_3 . Nous trouvons :

$$A_2 = 1,6 \pm 0,6 \qquad A_3 = 3,9 \pm 1,0$$

La résolution du système d'équations permet alors de tirer immédiatement a_1 , $\overline{\omega}_1$, a_3 et $\overline{\omega}_3$,

$$\begin{aligned}
 \text{soit : } a_1 &= 0,11 \pm 0,02 \\
 \bar{\omega}_1 &= 0,11 \pm 0,01 \\
 a_3 &= 0,66 \pm 0,04 \\
 \bar{\omega}_3 &= 0,34 \pm 0,04
 \end{aligned}$$

La détermination de a_2 et $\bar{\omega}_2$ entraîne une hypothèse supplémentaire. Nous supposons logiquement, comme le suggère Ross, que le transfert de l'ionisation de la couche L_{II} à la couche L_{III} est négligeable, c'est-à-dire $f_{23} = 0$. Dans ce cas, les valeurs suivantes pour les rendements restants deviennent :

$$\begin{aligned}
 a_2 &= 0,68 & f_{12} &= 0,16 \\
 \bar{\omega}_2 &= 0,32 & f_{13} &= 0,63
 \end{aligned}$$

Nous dressons le tableau récapitulatif suivant des divers résultats obtenus jusqu'ici, en y joignant ceux de K. Risch, postérieurs à nos mesures (65).

Auteurs	a_1	a_2	a_3	f_{12}	f_{13}	f_{23}	$\bar{\omega}_1$	$\bar{\omega}_2$	$\bar{\omega}_3$
M. A. S. Ross	0,11	0,62	0,60	0,19	0,58	0,06	0,11	0,32	0,40
Burdé et Cohen	0,15	0,34	0,54	0,24	0,52	(0)	0,09	0,66	0,46
K. Risch	0,07	0,46	0,59	(0,19)	(0,58)	(0)	0,09	0,54	0,41
Présent travail	0,11	0,68	0,66	0,16	0,62	(0)	0,11	0,32	0,34

°
° °

CHAPITRE IV

MESOTHORIUMS 1 ET 2

I - EXTRACTION A PARTIR DU NITRATE DE THORIUM.

SEPARATION RADIUM-THORIUM.

Devant l'impossibilité d'obtenir du Ms Th_1 malgré toutes nos démarches, nous avons envisagé et commencé son extraction à partir d'un sel de thorium de très ancienne purification. Plus tard, le "Radiochemical Centre" d'AMERSHAM fut en état de nous livrer un mésothorium, extrait des minerais de thorium, sous forme de bromure dans lequel chaque milligramme de radium équivalent était associé avec 100 milligrammes de sel d'ammonium et contenait 60 % en activité de ^{226}Ra et 40 % de ^{228}Ra . Cette proportion énorme de ^{226}Ra (99,7 % en poids) présentait un inconvénient certain et des causes d'erreurs supplémentaires. Aussi nous avons continué notre extraction précédente. Le ^{226}Ra n'en sera pas absent, puisque son ascendant immédiat, l'ionium, isotope du thorium, est nécessairement présent dans le nitrate traité. Cette quantité d'ionium dépend de la proportion d'uranium dans le minerai. Si on extrait le Ms Th_1 d'un sel de thorium dont la purification remonte à quelques années seulement, la quantité de ^{226}Ra devient au contraire négligeable à cause de la grande différence des périodes.

Les sources obtenues à partir de ce traitement permettront donc de confirmer les résultats déjà obtenus et les hypothèses formulées, tout le travail préliminaire et la mise au point technique étant assurés par les sources du Radiochemical Centre.

Le nitrate de thorium utilisé est un nitrate dit calciné qu'on trouve être à 48,8 % en ThO_2 . La quantité traitée, 3,8 Kg, permet d'espérer une activité maximum d'environ 140 microcuries en Ms Th_1 . Son analyse spectroscopique a révélé la présence d'aluminium, de silicium et de manganèse, à l'état de traces.

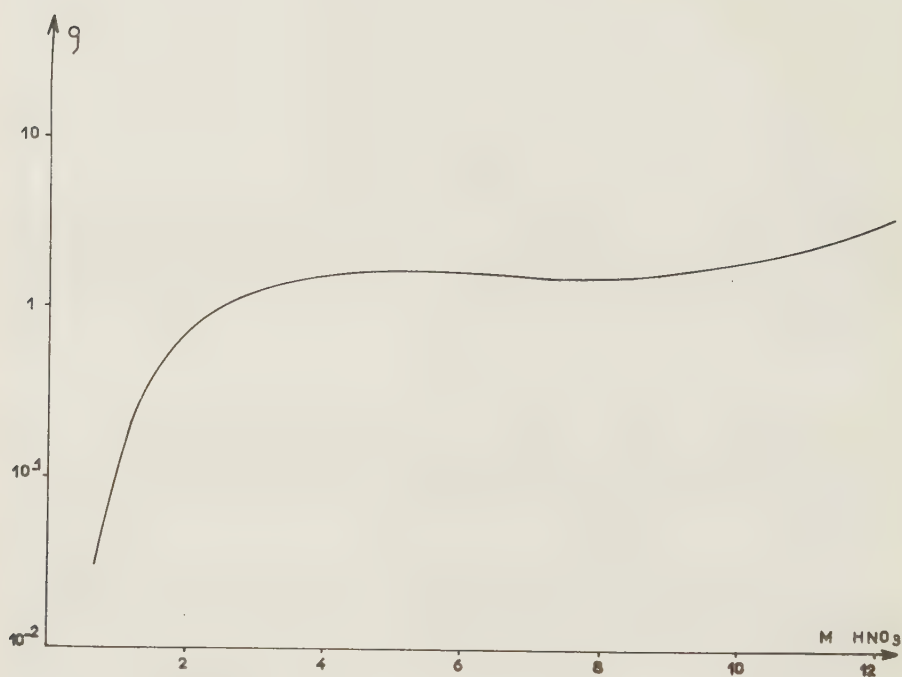


Figure 12 : Extraction du nitrate de Thorium par le T B P.

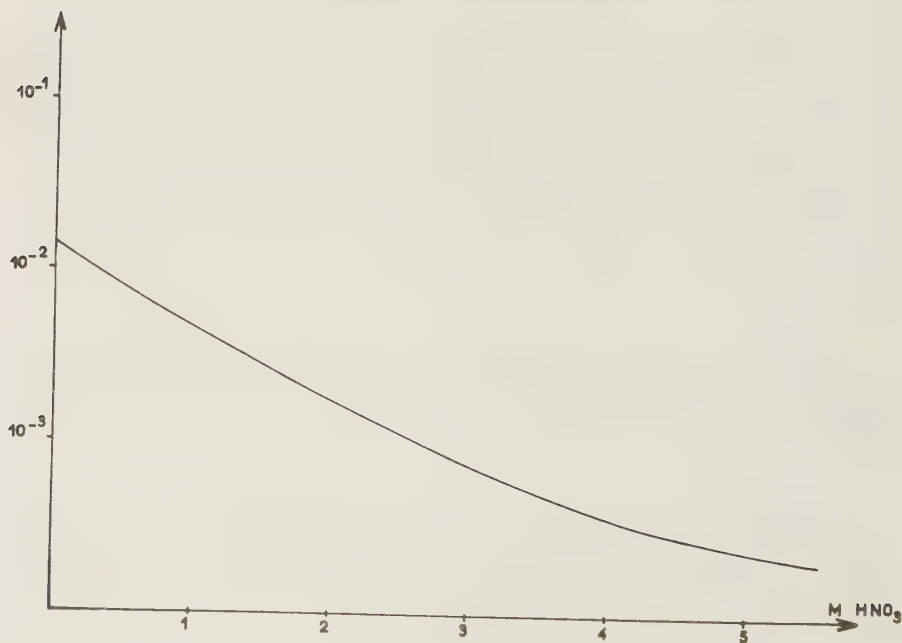


Figure 13 : Extraction du nitrate de strontium d'après
B. Bergström et J. Rydberg.

Nous n'avons pas pensé pouvoir suivre, pour cette séparation, à cause de la pureté exigée, le processus classique industriel de précipitation à l'état de sulfate avec le baryum ou le strontium comme entraîneurs, suivie d'une carbonatation et d'une cristallisation fractionnée à l'état de chlorure ou de bromure. Un instant, nous avons été tentés par les conclusions de B. Goldschmidt (67), concernant l'emploi du strontium : très grands coefficients de fractionnement, carbonatation aisée et élimination partielle commode du porteur strontium.

Nous y avons renoncé pour deux raisons : d'une part, la précipitation du sulfate de strontium à partir de solutions concentrées de nitrate de thorium n'est pas facile, ce sulfate étant étonnamment soluble dans de telles conditions, d'autre part, le strontium restant est inacceptable pour la préparation de sources destinées à la spectrométrie β à basse énergie.

La séparation Thorium-Radium peut encore se faire en précipitant le thorium, mais on s'expose à entraîner une partie du MsTh_1 (de 10 à 20 % à chaque précipitation par NH_4OH).

Nous avons finalement entrepris une concentration de MsTh_1 dans une solution aqueuse par additions successives de nitrate de thorium, suivies d'extractions du thorium seul par un solvant organique. L'extraction sélective des sels inorganiques par solvants organiques a été fort étudiée ces dernières années et il existe dans ce domaine une vaste bibliographie.

Des principaux solvants employés : la méthylisobutylcétone, le penta-éther, l'oxyde de mésityle, la thénoltrifluoroacétone, le tributylphosphate, nous avons retenu ce dernier désigné par les lettres T.B.P. Disponible en France aisément, puisqu'il est utilisé comme plastifiant dans l'industrie, il possède de très intéressantes propriétés. C'est un liquide dans l'échelle de température allant de -78°C à 289°C , il n'est pas volatil à la température ordinaire, peu miscible à l'eau (0,6 % à 25°C), chimiquement stable, très difficile à hydrolyser. Ses inconvénients sont sa viscosité assez élevée (3,41 centipoises à 25°C) et sa densité (0,973) voisine de celle de l'eau, mais ses propriétés extractives sont si élevées qu'on peut le diluer par un solvant organique inerte ; nous avons choisi le tétrachlorure de carbone dans la proportion de 66 % de T B P dans le mélange. Le benzène est à éviter à cause de la grande concentration en acide nitrique des solutions aqueuses. Le tétrachlorure de carbone a un autre avantage : c'est un très bon solvant du complexe formé.

Brita Bernström et Jan Rydberg (68) ont fait une étude assez poussée de la nature des complexes formés dans la phase organique avec des ions métalliques variés, dont Th^{4+} , et des conditions de formation. D'après Mc Kay (69), le complexe T B P - thorium doit être regardé comme une molécule non ionisée, non hydratée, de formule $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 - 2 \text{ T B P}$, l'absence d'ionisation en particulier résultat des mesures de conductivité et de viscosité. R.H. Gerke (70) avait donné toutefois une composition différente pour ce complexe. La première

formule donnée a été confirmée plus récemment (71), mais en se basant encore sur une loi de la forme : coefficient de partage $\propto K \cdot (\text{concentration de TBP})^n$, valable aux hautes dilutions, dans laquelle n représente le nombre de molécules de TBP dans le complexe.

Le coefficient de partage q , défini comme le rapport des concentrations en thorium dans la phase organique et dans la phase aqueuse est une fonction de la concentration en acide nitrique. Ses variations sont représentées par la courbe ci-dessous (figure 12), due à Mc Kay, pour un mélange organique TBP 19 %, Kérosène 81 %, dans le cas de très petites concentrations en nitrate extractible. Très intérieur à 1 pour les faibles acidités, il croît très vite pour atteindre un maximum pour une acidité correspondant à HNO_3 4-5M. On note un très léger minimum, puis une remontée vers les très hautes concentrations acides.

Une explication du ralentissement de la croissance de q vers les acidités moyennes est la compétition de plus en plus vive entre le nitrate de thorium et l'acide nitrique vis-à-vis du TBP libre, l'acide nitrique formant également un complexe du type $\text{HNO}_3 - \text{TBP}$.

Pour l'éviter, des relargants sont en général utilisés, tels que des nitrates non extractibles comme ceux de sodium ou de calcium qui maintiennent la concentration en nitrate à de hautes valeurs. Le nitrate d'ammonium et surtout les nitrates de magnésium ou d'aluminium sont aussi conseillés (72).

L'extraction des nitrates de métaux divalents est quasi nulle. B. Bergström et J. Rydberg ont représenté l'extraction du nitrate de strontium dans les mêmes conditions que précédemment (figure 13). Dans le cas de fortes concentrations en nitrate de thorium, enfin, l'allure des courbes est approximativement conservée, mis à part évidemment l'effet de saturation du TBP qui peut intervenir.

Nous avons donc basé sur ces propriétés (extraction du nitrate de thorium seul, facilement contrôlable dans de grandes limites par la concentration en HNO_3) le processus d'extraction suivant. La concentration de la solution aqueuse en HNO_3 fut fixée à 5N. A cette valeur, le coefficient d'extraction est déjà suffisamment élevé et l'hydrolyse rapide du TBP n'est pas à craindre. J. Kennedy et S.S. Grimley (73) ont montré en effet, que le TBP très pur agité pendant cinq jours avec HNO_3 5N ne donnait naissance à la température ordinaire à aucun produit d'hydrolyse. Ce résultat est confirmé par L.L. Burger (74) qui cite des expériences de contact de deux semaines d'une solution nitrique 3N de nitrate d'uranyle 0,5 M avec du TBP sans modification des propriétés extractives ; aucune apparition d'impureté nuisible n'est mise en évidence après dix cycles d'opération.

La concentration en nitrate de thorium fut établie à 0,9 M (soit 50 g. de nitrate calciné dans 100 cc de solution). La solution organique d'un volume

initial de 150 cm^3 contenait 100 cm^3 de TBP fraîchement distillé sous vide, le diluant étant, comme nous l'avons dit, le tétrachlorure de carbone. Après chaque extraction, la concentration en nitrate de thorium et en acide nitrique de la solution aqueuse est réajustée ; son volume augmente donc, on renforce parallèlement la phase organique.

La réextraction du nitrate de thorium engagé dans le complexe organique est faite par traitement avec de l'eau distillée, on compense le faible coefficient de partage de l'opération par un grand volume d'eau (1 litre à chaque cycle). On a en effet éliminé tout procédé nécessitant l'emploi d'un sel quelconque, en particulier relargants, etc..., pour éviter sa concentration éventuelle dans la phase aqueuse initiale qui gênerait le traitement ultérieur de séparation du MsTh_1 . Avant cette réextraction du thorium, la phase organique subit un lavage avec une petite solution d'acide nitrique 5N pour récupérer le MsTh_1 qui pourrait être entraîné.

On effectue au cours du cycle les contrôles suivants : étude de la croissance du Th X ($T = 3,65$ jours) par comptage $\beta - \gamma$ dans une prise d'essai de la solution organique d'extraction, qui permet de vérifier que le Th X et le MsTh_1 ne sont pas extraits ; dosages enfin au P_H mètre par la soude de l'eau de réextraction qui déterminent grâce aux deux paliers de la courbe la concentration en acide et en thorium extraits, et à intervalles moins fréquents, à titre de contrôle dosage par le même procédé de la solution aqueuse initiale (prise d'essai de $0,5 \text{ cm}^3$). Ce dosage par la soude se révèle suffisamment précis, des étalonnages ayant été effectués au préalable par pesée de la fraction thorium. (figure 14).

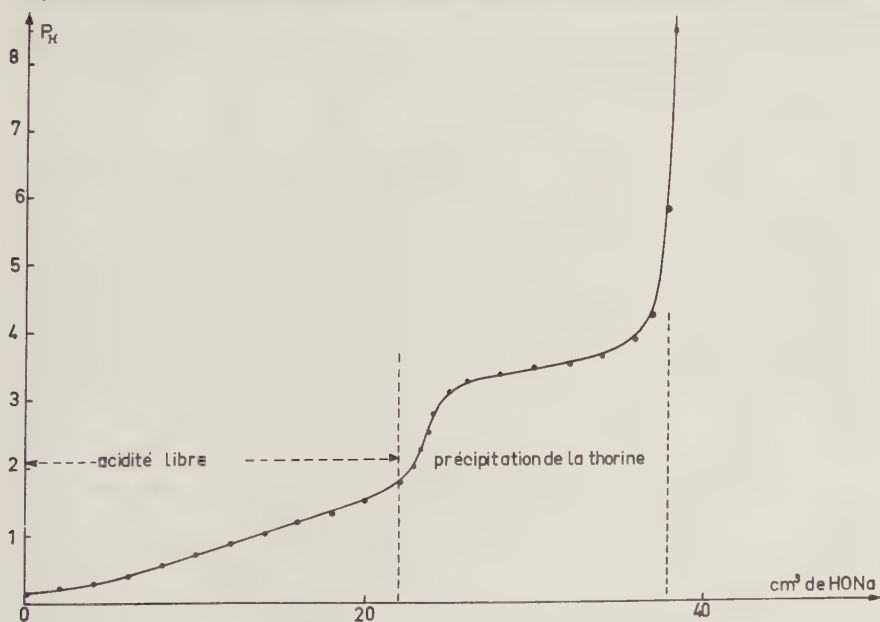


Figure 14 : Dosage par la soude de l'eau de réextraction.

On sait que le premier point d'équivalence caractérise la neutralisation de l'acidité libre et le deuxième la fin de précipitation. Les courbes expérimentales obtenues diffèrent quelque peu de la courbe théorique, mais les étalonnages indiqués et la reproductibilité d'allure assurent une précision très largement suffisante.

On pourrait même dire que ce dosage permet un calcul approximatif du produit de solubilité de la thorine $\text{Th}(\text{OH})_4$, qu'on a trouvé être de l'ordre de 10^{-44} . Les valeurs trouvées précédemment sont 10^{-42} (75) et 10^{-39} (76).

Le coefficient moyen de partage pour l'extraction est d'environ 3 (de 2,6 à 3,4), celui de réextraction est voisin de 1. Une trentaine de cycles complets furent nécessaires avec trois solutions aqueuses de départ. Il n'est en effet pas souhaitable de dépasser ce nombre. Déjà, à ce stade, en concentrant les solutions aqueuses, on observe un abondant précipité blanc qui est vraisemblablement du monobutylphosphate résultant quand même de l'hydrolyse. Le dibutylphosphate qui peut se former reste en solution organique (73). Ce précipité, soluble dans l'eau, est traité par le carbonate de soude. Le carbonate formé est attaqué par l'acide nitrique et la solution obtenue est rajoutée aux eaux-mères initiales.

Chaque agitation dure en moyenne 15 minutes. La décantation est, en général correcte, on assiste cependant à un renversement de densités des deux phases d'extraction, la phase aqueuse se retrouvant au-dessus de la phase organique après extraction. Les trois solutions nitriques initiales sont enfin concentrées par distillation, chaque concentration étant suivie d'une extraction par le TBP. Cette élimination du thorium se poursuit jusqu'à disparition du palier correspondant dans les dosages par la soude. Une partie de l'acide nitrique est éliminée par distillations et dilutions successives.

Nous n'avons pas risqué la destruction de l'acide nitrique par l'aldéhyde formique, comme l'ont décrite B. Goldschmidt et al. (77), la simple neutralisation par la soude de la fraction restante n'étant pas un inconvénient. La solution finale a un volume d'une centaine de cm^3 . Elle est neutralisée par la soude pour amener son pH jusque vers 2, elle sera purifiée par le cycle chimique de sulfatation et carbonatation décrit plus loin à propos de la préparation des sources de MsTh_1 . Son volume sera amené alors à 5 cm^3 . Rappelons que, pour la quantité de thorium traitée, soit 3,8 Kg, le nombre des mises en solution est d'environ 80.

Le rendement de l'opération est difficile à déterminer avec une grande précision. Ne disposant pas d'un spectromètre gamma, nous n'avons pas pu vérifier l'évolution du MsTh_1 éventuellement passé dans la phase organique, ce qui aurait permis de déterminer la concentration en MsTh_1 . Néanmoins la comparaison de l'activité du produit final avec le produit étalonné, d'origine

anglaise, a montré que le rendement global était satisfaisant.

II - PREPARATION DES SOURCES DE MsTh_2 et MsTh_1 .

a) MsTh_2 : L'étude du rayonnement β du MsTh_1 suppose l'examen préalable du spectre β de son descendant immédiat, le MsTh_2 . Ce dernier en effet a d'abord une période trop courte (6, 13 h.) pour pouvoir le négliger lors même des premiers comptages dans le temps ; son taux de désintégration atteint 5,5 % de celui du MsTh_1 au bout d'une demi-heure seulement. Ensuite, son spectre est particulièrement fourni : 2 électrons environ par désintégration (28). Nous avons donc entrepris cette étude, guidés par les nombreux travaux précédents, sans pouvoir par contre utiliser les méthodes décrites de préparation de source, toutes étant, sauf deux, sans possibilité d'élimination rapide de l'entraîneur. L'une de ces exceptions est une méthode par échange d'ions (78) dont nous re-parlerons; l'autre qui constitue la technique dite de Peterson (79) fut utilisée en particulier par Brodie (80) qui étudia, comme nous, la zone de basse énergie des électrons Auger L. Mais le tracé du spectre obtenu est malgré cela loin d'être satisfaisant, aucune raie Auger n'est vraiment séparée.

L'obtention régulière du MsTh_2 pur à partir d'une solution de MsTh_1 suppose en général l'élimination des descendants, c'est-à-dire la coupure de la filiation au niveau du RdTh . Cette élimination peut se faire par précipitation du MsTh_1 (et du ThX) avec le baryum comme porteur, en tant que chlorure par HCl concentré (43) ou comme sulfate suivie d'une carbonatation (4). Le ThX décroît avec sa période de 3,65 jours et il n'en reste que 0,4 % au bout d'un mois. Le MsTh_1 peut aussi être isolé grâce à la faible volatilité de son chlorure dans un courant de gaz chlorhydrique et de tétrachlorure de carbone à 800°C (81).

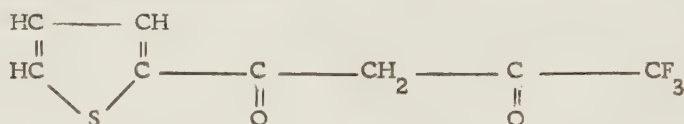
Le plus souvent, le RdTh est éliminé par précipitation : par NH_3 (82), par NH_4OH diluée avec le cérium comme entraîneur (28), par la pyridine (83) ou par échangeur d'ions.

L'isolement du MsTh_2 d'une solution ne contenant plus que MsTh_1 est réalisé généralement par précipitation en tant qu'hydroxyde avec comme entraîneur : le fer (15 μg) (80, 82, 84), le lanthane (28, 83) ou le cérium dans la méthode de Peterson (80, 84). Des essais d'électrolyse furent tentés malgré le caractère hautement électropositif de l'actinium sur cathode d'argent en solution neutre en l'absence de fer (43 et 82), ou en solution alcoolique, additionnée de 20 % d'acétone (43), en milieu acide avec du fer et passage de gaz carbonique, par réactions secondaires (85). Citons enfin la méthode la plus récente et, semble-t-il, la meilleure, la séparation par échange d'ions sur Dowex-50 réalisée par S. BJØRNHOLM et al. (78). Le MsTh_2 est extrait journellement de la colonne par élution avec une solution à 5 % de citrate d'ammonium à pH 4,3.

Ces méthodes nécessitent pour la plupart, nous l'avons dit, un porteur

rendant impossible ou illusoire, s'il n'est pas éliminé, l'étude du spectre à basse énergie. Souvent, elles demandent de plus l'association de baryum au MsTh_1 pour empêcher son entraînement lors de la séparation du MsTh_2 ; nous devons éviter cela pour la préparation ultérieure des sources de MsTh_1 . Nous avons finalement basé notre séparation du MsTh_2 , ainsi d'ailleurs que l'élimination du RdTh , sur une méthode d'extraction par solvant. L'échange d'ions est aussi une technique séduisante qui permet d'obtenir des sources d'assez bonne qualité (78), mais le gros avantage de l'extraction par solvant sur cette dernière est sa rapidité. Nous avons gagné une heure sur S. Bjørnholm, bien que notre méthode comporte le processus assez long d'évaporation dans le vide.

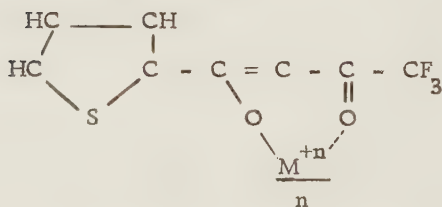
La possibilité de séparer le MsTh_2 de sa solution mère de MsTh_1 sans introduire d'entraîneurs ni pour l'un ni pour l'autre nous fut fournie par les travaux de F. T. Hagemann (86) (87). L'emploi de la thénoyltrifluoroacétone (TTA) en solution benzénique semble en effet particulièrement commode. Ce corps est une β -dicétone de structure :



qui sous sa forme énolique est susceptible de former des composés " chélatés ", solubles dans un solvant non polaire comme le benzène, suivant la réaction :



La structure d'un tel composé peut se représenter par le schéma :



La constante d'équilibre de la réaction peut s'écrire, avec $\left[\text{H-TTA} \right] = \text{C}^{\text{te}}$ (la quantité de TTA étant largement surabondante) :

$$K = \frac{\left[\text{M}(\text{TTA})_n (\text{benzène}) \right] \left[\text{H}^+ (\text{aq}) \right]^n}{\left[\text{M}^{+n} (\text{aq}) \right]} = q \left[\text{H}^+ (\text{aq}) \right]^n$$

q étant le coefficient d'extraction. La figure 15 représente les courbes d'extraction de traces de Th, Po, Bi, Tl (III et I), Pb et Ac en fonction du P_H à partir d'une solution mère de radium, données par Hagemann. La phase organique était à 0,25 M de TTA dans le benzène, les volumes des deux phases étant égaux.

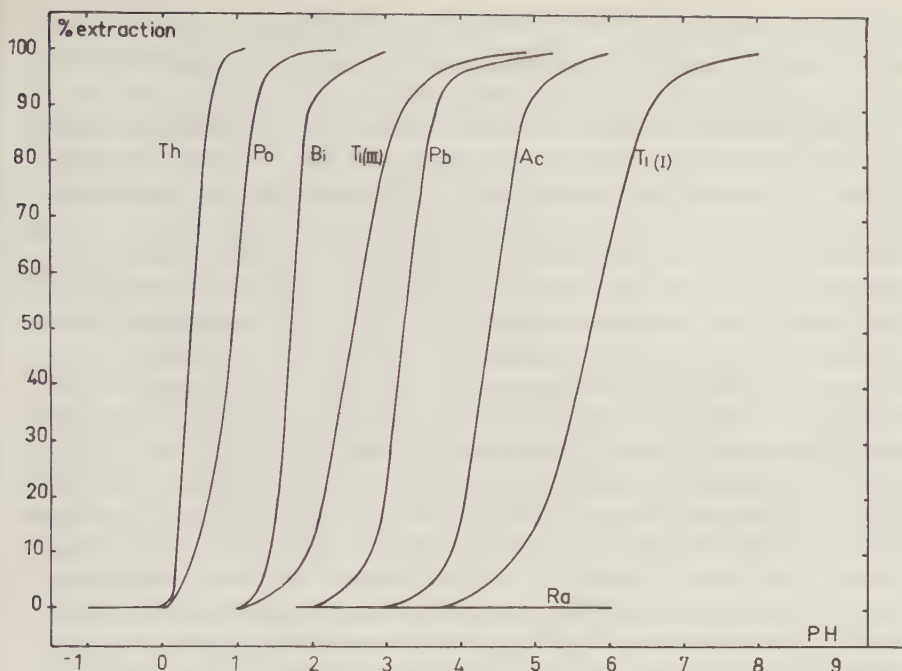


Figure 15 : Extraction par la T. T. A. d'après F. T Hagemann.

Le P_H de la solution de $MsTh_1$ contenant un certain pourcentage de $RdTh$ reformé en équilibre avec ses descendants, le thoron et le dépôt actif, est amené à 6 avec une solution diluée de soude. Il faut employer cette base et non l'ammoniaque, la présence d'une trop grande quantité d'ions ammonium est indiquée (87) comme nuisible. Son volume est de 5 cm³ environ, pour une activité globale de l'ordre de 200 microcuries. On l'agite pendant quelques minutes avec 10 cm³ de la solution benzénique de TTA. La décantation est très rapide. La phase organique est lavée par 2 cm³ d'eau à P_H 7-8 pour récupérer le $MsTh_1$ éventuellement entraîné. Cette phase organique contient en particulier $RdTh$ (^{228}Th) et $MsTh_2$, on peut très facilement extraire ces deux corps de cette solution en décomposant les complexes formés par une solution d'acide 0,1 N. De la sorte, une dizaine d'extractions, régulièrement espacées pendant un mois, laissent moins de 0,5 % de ThX en solution. A ce stade, une extraction toutes les 24 heures permet d'engager dans la phase organique un $MsTh_2$ pratiquement pur. A chaque opération, il convient évidemment de contrôler soigneusement le P_H , c'est-à-dire en fait, rajouter de la soude. La réextraction par 5 cm³ d'acide 0,1 N permet donc d'obtenir une solution de $MsTh_2$ sans entraîneur. Cette solution est lavée au benzène pur pour éliminer toute trace de T. T. A.

L'expérience nous ayant montré qu'aucune technique de préparation de

sources ne pouvait rivaliser avec l'évaporation dans le vide pour l'uniformité et la finesse du dépôt, nos premiers essais furent axés sur l'obtention de chlorure de MsTh_2 (88), que l'on supposait assez volatil. L'acide de réextraction fut donc l'acide chlorhydrique. Les 5 cm³ de la solution de chlorure de MsTh_2 sont réduits à 0,2 cm³ dans un petit appareil spécial sous courant d'air chaud et sous rayonnement infra-rouge. Ces 0,2 cm³ sont placés dans une gouttière de platine, mais que la mise à sec soit faite à l'air, sous courant de gaz chlorhydrique chaud ou de tétrachlorure de carbone à 400° C, nos nombreux essais d'évaporation dans le vide jusqu'à 1500° C qui suivirent se soldèrent par des échecs, sans doute devant notre incapacité d'éviter la formation d'oxychlorure. S. Fried, F. Hagemann et W. H. Zachariasen (88) signalent la volatilisation du AcCl_3 mais ils le préparent in situ dans un appareil sous vide et ne l'exposent pas à l'air avant sa sublimation. Aussi, nous avons préféré utiliser l'acide nitrique pour la réextraction. Le nitrate de MsTh_2 mis à sec et chauffé dans le vide se transforme en oxyde, et c'est cet oxyde que nous avons évaporé à haute température dans une gouttière de tantale. La transformation en oxyde se fait par chauffage très lent vers 800-900° C dans le vide avec interposition d'un cache d'aluminium entre la gouttière et le support de source. Cette opération est suivie à la jauge Peming. Le cache permet l'élimination éventuelle de résidus volatils ; il est alors escamoté et la gouttière est portée pendant 2 à 3 secondes à 1800° C environ. Le support de source est en mica recouvert de titane suivant la technique précédemment décrite. Les sources utilisées ont toutes 4 mm de large, ce qui correspond pour notre spectromètre à un pouvoir séparateur de 0,6 %. Il est intéressant de comparer les sources obtenues par ce procédé avec celles obtenues par S. Bjørnholm (78). Cette comparaison peut se faire justement par la mesure du pouvoir de résolution des raies de conversion L du γ de 57,8 Kev (raies L_{II} et L_{III} à 38,1 et 41,5 kev) correspondant au niveau excité le plus bas du RdTh . S. Bjørnholm et al. obtiennent pour L_{III} 1,2 %. Notre pouvoir de résolution atteint facilement 0,7 %, sans d'ailleurs en avoir cherché la limite en diminuant la largeur de source ou l'ouverture du faisceau. La structure du groupe Auger L de 5 à 15 kev confirme la grande activité spécifique obtenue. Le temps utile de comptage de telles sources n'excède pas deux périodes en moyenne, un contrôle de la pureté est fait après 36 ou 48 heures par la mesure de l'activité résiduelle.

b) MsTh_1

La zone d'étude intéressante étant très certainement la bande d'énergie inférieure à 30 kev, nous nous sommes fixés les mêmes objectifs que pour le MsTh_2 : obtention d'un produit sans entraîneur et évaporation dans le vide.

Les solutions-mères de MsTh_1 ayant servi à la préparation des sources de MsTh_2 ne peuvent pas être utilisées directement à cause, en particulier, de la présence des ions Na^+ d'ajustement de P_H . Le processus de purification le plus évident est la précipitation à l'état de sulfate, suivie d'une carbonatation et d'une remise en solution. Le choix de baryum ou de strontium comme entraîneur a déjà été écarté, leur élimination rapide et complète étant jugée

trop aléatoire, bien qu'à la rigueur possible. Une séparation des carbonates de baryum et de radium par dissociation sélective dans le vide à 400-800° C du carbonate de baryum et dissolution dans l'eau de l'oxyde de baryum a été en effet proposée depuis longtemps (89). Mais surtout ce sont les méthodes chromatographiques sur absorbants minéraux ou sur résine échangeuses d'ions qui sembleraient les mieux adaptées et qui ont déjà été fort étudiées (90, 91, 92).

Ici, cependant, la rapidité de préparation constitue un facteur aussi important que la pureté, une partie intéressante de l'étude devant s'effectuer en cours de croissance du MsTh_2 . Aussi, nous avons bien adopté le cycle normal de purification des alcalino-terreux, mais le porteur choisi fut le plomb. Son sulfate et son carbonate, tous deux du système orthorhombique, sont isomorphes de leurs correspondants alcalino-terreux. L'emploi du plomb, déjà préconisé par d'autres chercheurs, comme Glaser, présente de gros avantages : élimination au moins partielle très facile en fin de cycle par des réactions chimiques facilement différentes de celles des alcalino-terreux (par exemple : sulfure insoluble en milieu acide) et surtout son oxyde facilement volatil dans le vide à température peu élevée.

Le mode opératoire est le suivant : le P_H de la solution-mère de 5 cm^3 est ajusté à 6 avec de la soude, puis on procède à trois extractions successives de MsTh_2 par la TTA en contrôlant le P_H chaque fois. On lave soigneusement la solution avec du benzène pur pour éliminer toute trace organique, puis on acidifie par une goutte de HNO_3 concentré. On ajoute ensuite 1 cm^3 d'une solution de nitrate de plomb à 10 g/litre, et 1 cm^3 d'une solution concentrée de sulfate de soude. Le précipité centrifugé est soigneusement lavé à l'eau bidistillée plusieurs fois ; il est ensuite mis en suspension dans 3 à 4 cm^3 d'une solution saturée de carbonate de soude. La carbonatation à froid est très rapide. Le précipité est centrifugé, lavé soigneusement puis attaqué par 1 cm^3 d'acide nitrique N. Une partie importante du porteur plomb est éliminé ici par passage de H_2S . La solution active est concentrée à 0,2 cm^3 , puis portée dans une gouttière de tantale et mise à sec. On fait le vide et par chauffage très lent, avec interposition d'un cache d'aluminium au-dessus de la gouttière, on décompose le nitrate de plomb, vers 360° C, en oxyde PbO , qui s'évapore avec décomposition vers 850° C. En fait, on pousse la température jusque vers 1100° C.

Le cache étant dissimulé et le vide de l'ordre de 0,1 micron, la gouttière de tantale est alors portée rapidement pendant 2 à 3 secondes, vers 1800-1900° C. Le support de source est de même forme que pour le MsTh_2 , la couche conductrice sur la lame de mica étant en graphite.

Nous n'avons pas fait une étude particulière des conditions de volatilisation du nitrate de MsTh_1 , à cause surtout du mauvais rendement des évaporations dans le vide et aussi de la reproductibilité imparfaite des résultats. Des essais de dépôt sur des plaques de verre laissent à penser que le MsTh_1 se volatilise

avant le MsTh_2 , déjà vers 1300-1500°C. Il y a là peut-être une possibilité que nous n'avons pu exploiter de séparer thermiquement le MsTh_1 du MsTh_2 reformé jusque là.

Le rendement de la sulfatation est excellent, la très grande partie du MsTh_1 est entraînée par le sulfate de plomb. Par contre, la carbonatation ne donne pas toujours des rendements aussi quantitatifs. Une petite fraction non négligeable du MsTh_1 se retrouve en solution dans le carbonate de soude. On sait que le carbonate de plomb en présence de carbonates alcalins donne naissance à la formation de sels basiques, il peut y avoir de plus production de carbonates et de sulfates doubles. Les premiers essais ont été faits à chaud, au point d'ébullition de la solution de carbonate, la quantité de MsTh_1 restant en solution est alors importante. Par des essais systématiques de variations de température et de durée de contact, nous avons constaté qu'à froid (20° C) la carbonatation est très rapide, un temps de contact de quelques minutes suffit. Il ne semble pas que l'emploi de bicarbonate de potassium qui permettrait de limiter la formation de sel basique, donne des résultats nettement supérieurs.

Les meilleures sources de MsTh_1 obtenues par ce procédé sont comparables à celles du MsTh_2 . Le pouvoir de résolution de la raie L_{III} du γ de 57,8 kev déjà cité atteint 0,7 %. La structure générale du groupe Auger L du MsTh_2 à l'équilibre est analogue à celle qui a déjà été étudiée, mis à part évidemment le fond continu constitué par le spectre β nucléaire du MsTh_1 .

Les premiers comptages sont faits deux heures environ après la fin de la séparation. Des essais directs de volatilisation à partir du sulfate à plus haute température furent tentés. Outre le gain de temps obtenu nous avons observé dans certains cas une séparation thermique très poussée du MsTh_1 qui se dépose pratiquement seul. Mais cette technique fut abandonnée, car les sources obtenues étaient en général de moins bonne qualité et les conditions difficilement reproductibles.

En conclusion, on peut dire qu'une étude systématique des conditions de dissociation thermique des nitrates et sulfates et de la volatilité des oxydes de MsTh_1 et MsTh_2 serait fort utile. La difficulté principale réside en la présence dans nos produits de traces incontrôlables d'ions étrangers. D'autre part, vu le danger de la manipulation de ces produits, il serait nécessaire d'opérer sur des quantités extrêmement faibles et donc de faire des mesures au spectromètre à scintillations.

III - ETUDE DU MESOTHORIUM 2.

A) Raies de Conversion. Le schéma de désintégration du MsTh_2 est assez complexe, le niveau de plus haute énergie est à 1,7 Mev et le retour à l'état

fondamental met en jeu une douzaine d'états excités intermédiaires. L'analyse de Kurie décèle la présence d'au moins six spectres β nucléaires partiels. Nous représentons le schéma de désintégration le plus récent proposé par S. Bjørnholm et al. (93).

Nous nous sommes bornés au tracé de certaines raies de conversion de basse énergie pour déterminer l'intensité absolue des électrons Auger L dont nous avons fait l'étude, notre spectromètre ne nous aurait d'ailleurs pas permis d'envisager le tracé complet du spectre de conversion, l'énergie maximum d'utilisation courante se situant vers 500 kev.

Le premier état excité du RdTh est à 57,8 kev, il semble que la plupart des transitions passent par ce niveau (93, 84, 80). Le γ correspondant étant à peu près entièrement converti (94, 95, 96, 97), ses raies de conversion sont très largement prépondérantes dans l'ensemble du spectre. Le caractère quadrupolaire électrique de cette transition apparaît immédiatement dans l'analyse des rapports $\frac{L_I + L_{II}}{L_{III}}$. La raie L_I , à peine apparente, n'est pas séparée de la raie L_{II} . (figure 16).

Auteurs	Rapport $\frac{L_I + L_{II}}{L_{III}}$
Black (82)	1,2
Brodie (80)	1,2
Bjørnholm (93)	$1,15 \pm 0,15$
Présent travail	$1,30 \pm 0,10$

Les rapports théoriques correspondants, tirés des tables de Rose donnent, d'après (93) :

2	pour une transition E_1
1,25	" " " E_2
180	" " " M_1

Le rapport $\frac{L}{M}$ est de 3,8, supérieur au rapport théorique (2,2) calculé à partir des mêmes tables. Le fait est maintenant bien connu et signalé pour de nombreuses transitions de ce type dans les noyaux lourds. Enfin, le rapport $\frac{L}{M + N + O} = 2,95$ est un excellent accord avec les résultats de Kyles (84) et Brodie (80).

Un γ d'énergie voisine de 129 kev, provenant d'un niveau immédiatement supérieur alimente le niveau précédent. Ses raies de conversion sont nettement visibles et son caractère quadrupolaire électrique est également certain, confirmé par le rapport K/L, bien que la raie K de conversion, soit de très faible intensité.

Auteurs	Rapports $\frac{L_I + L_{II}}{L_{III}}$	Rapports K/L
Black	1,4	
Brodie	1,4	0,023 $\pm$ 0,005
Björnholm	1,7 $\pm$ 0,2	0,12 $\pm$ 0,03
Présent travail	1,7	0,08

Deux raies de conversion assez intenses figurent dans le spectre à 956,5B ρ et 985 B ρ , soit 74,9 kev et 79,2 kev (figure 17). L'hypothèse de la conversion L_{II} et L_{III} d'un γ d'énergie voisine de 95 kev étant exclue par suite de la différence d'énergie et aussi par la forme apparemment complexe et élargie de la raie de plus grande énergie, nous partageons les conclusions de S. Björnholm. La moins énergétique représente la conversion K d'un γ de 184 kev environ, l'autre la raie L_I d'un γ de 100 kev, dont le caractère est probablement dipolaire magnétique. Ce γ de 184 kev ne saurait représenter la transition "cross-over" (187 kev) correspondant aux deux premiers niveaux, la différence d'énergie est trop grande. Le problème soulevé à ce sujet par Kyles et Brodie se trouve donc apparemment résolu et nous confirmons les conclusions de Björnholm. Les deux premiers niveaux excités font donc partie d'une bande de rotation de parité paire (0 + , 2 + , 4 + , ...), l'état fondamental étant un état 0 +, comme le montre la systématique des noyaux pair-pairs et aussi l'étude de la désintégration de U²³² et Pa²²⁸ (94) (97).

Les intensités relatives des transitions étudiées s'obtiennent sans difficulté si l'on admet les coefficients de conversion théoriques des tables de Rose. Pour calculer l'intensité absolue des transitions, nous avons utilisé une source de MsTh₁. Le tracé des raies de conversion du MsTh₂ fut effectué dès l'établissement de l'équilibre MsTh₁ - MsTh₂, et avant que l'activité dîte aux descendants du ²²⁶Ra présent ne soit devenue sensible. Au bout de 11 mois, le tracé total du spectre fut repris et en particulier les raies L_{II} et L_{III} du γ de 84 kev de désintégration du RdTh. Ces raies sont alors parfaitement visibles, très approximativement aussi intenses que par exemple la raie K 184. Nous avons admis les résultats de F. S. Stephens, F. Asaro et I. Perlman (98) concernant les intensités de cette transition de 84 kev et les coefficients de conversion. Pour 100 désintégrations, nous avons 25 $\pm$ 2 électrons de conversion. Il nous est ainsi possible de remonter aux intensités absolues des transitions du MsTh₂, en tenant compte de la croissance du RdTh au sein de cette source de MsTh₁.

Nous avons, en effet, en désignant par : λ_1 et λ_2 les constantes

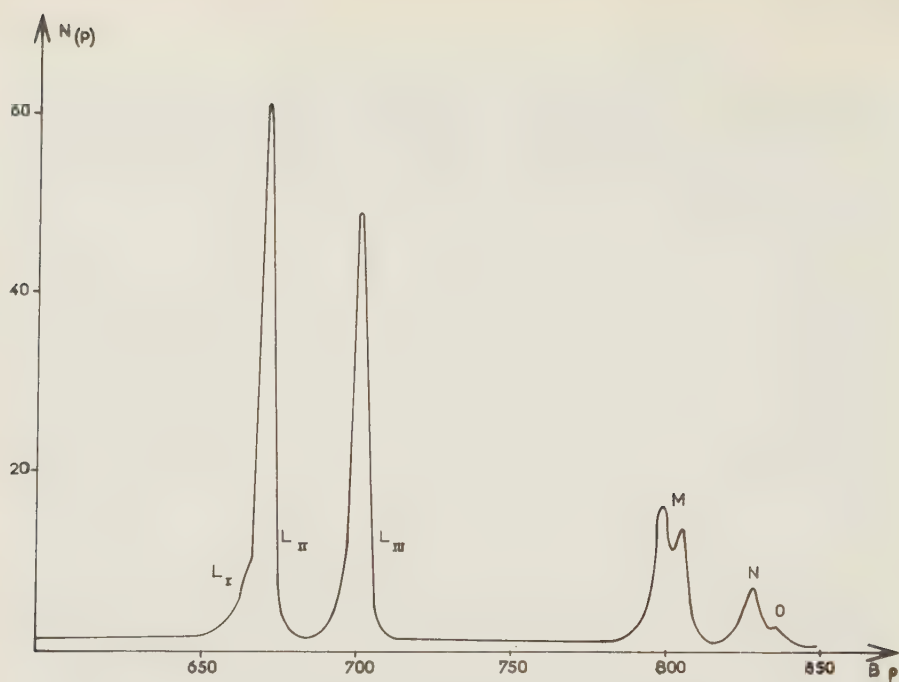


Figure 16 : Raies de conversion du γ de 57,8 Kev.

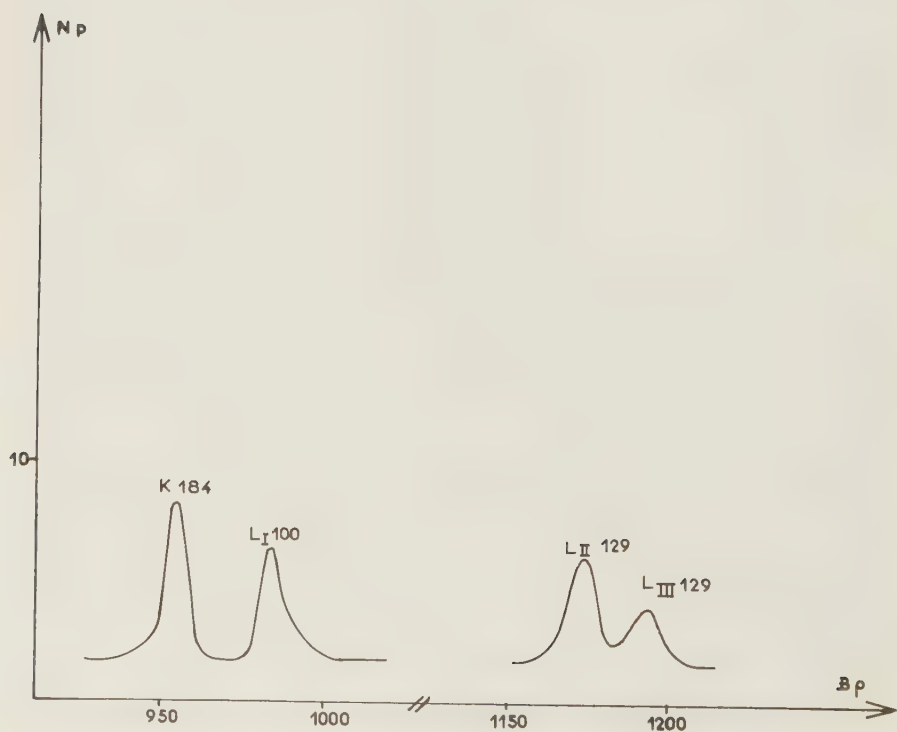


Figure 17 : Raies de conversion de plus haute énergie

radio-actives du MsTh_1 et du RdTh ; f_1 et f_2 , les nombres d'électrons de conversion des γ de 58 kev et 84 kev pour une désintégration ($f_2 = 0,25 \pm 0,02$).

S_1 l'aire des raies de conversion du γ de 58 kev au temps $t = 0$.

S_2 l'aire des raies de conversion du γ de 84 kev au temps $t = \theta = 11$ mois.

$$f_1 = f_2 \frac{S_1}{S_2} \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left(e^{-\lambda_1 \theta} - e^{-\lambda_2 \theta} \right)$$

Nous trouvons $f_1 = 0,76 \pm 0,11$. Ce γ de 58 kev étant, nous l'avons vu, pratiquement totalement converti, cette transition intervient donc dans 76 % des désintégrations.

Une difficulté dans la détermination de S_2 vient du chevauchement de la raie M de conversion avec la raie L_1 du γ de 100 kev du MsTh_2 . Nous avons déterminé cette aire à l'aide de l'expression :

$$\left(\frac{M}{L} \right)_{84} = \left(\frac{M}{L} \right)_{58} \cdot \frac{\alpha_{M\ 84}}{\alpha_{M\ 58}} \cdot \frac{\alpha_{L\ 58}}{\alpha_{L\ 84}}, \text{ le rapport}$$

$\left(\frac{M}{L} \right)_{58}$ étant le rapport expérimental connu. Les coefficients de conversion sont tirés des tables de Rose ($Z = 88$ pour α_{84} et $Z = 90$ pour α_{58} évidemment) Cette méthode de calcul est nécessaire, les α_M donnés par Rose étant peu précis en valeur absolue, mais cohérents entre eux. Le rapport trouvé est en assez bon accord avec le rapport expérimental donné par Rosenblum et al. (99).

Nous établissons le tableau suivant :

Transition (Kev)	Raies de Conversion	Intensité relative expérimentale des raies	Coefficient de Conversion Théorique	Intensités %
58	L+M+N+O	100	100	76 ± 11
129	L	7,7	1,55	$9,6 \pm 1,5$
184	K	5,8	2,7	$6,0 \pm 0,9$
100	L	4,4	2,8	$4,5 \pm 0,9$

Le coefficient de conversion de la raie K 184 a été choisi dans l'hypothèse d'une transition dipolaire magnétique, comme l'a établi S. Bjørnholm.

Nous pouvons dresser un tableau récapitulatif des valeurs trouvées par les précédents auteurs :

Transition	Kyles	Brodie	Bjørnholm	Présent travail
58	60	59	70 ± 7	76 ± 11
129	6	7,4	$10,5 \pm 1,0$	$9,6 \pm 1,5$
184	7,2	6	6,6	$6,0 \pm 0,9$
100		4	5,5	$4,5 \pm 0,9$

B) Electrons Auger-L. Rendement Auger.

Le groupe des électrons Auger-L correspondant à la désexcitation du noyau du RdTh 228 s'étend de 6 à 20 kev environ. Il fut tracé à l'aide de plusieurs sources de MsTh_2 d'activité spécifique comparable, avec un pouvoir séparateur théorique de 0,6 %. La figure 18 représentant ces raies Auger montre une assez bonne structure qui ne paraît pas trop affaiblie par la rétrodiffusion et le selfabsorption.

L'identification des raies est évidemment délicate. On sait que dans cette limite d'énergie étroite se trouvent théoriquement 45 raies LMM et près de 200 raies LMN ou LNN. Nous nous bornerons à indiquer le groupe de raies correspondant aux pics les plus apparents. Les attributions proposées ici sont en accord d'ensemble avec celles faites par divers auteurs dans l'étude des Auger-L de certains atomes lourds : RaD et dépôt actif du thorium déjà cités, Hg^{199} (100) enfin. Nous utiliserons pour déterminer leurs énergies la formule approchée :

$$E_{\text{LBC}} = E_{\text{L}}^Z - E_{\text{B}}^Z - E_{\text{C}}^{Z+1}$$

Nous sommes guidés dans ces attributions par la très faible importance des vacances primaires dans la couche L_1 , venant du caractère quadrupolaire électrique des deux principaux γ convertis et aussi du transfert de l'ionisation aux couches L_{II} et L_{III} par effet Coster-Kronig.

Rendement moyen $\overline{\omega}_{\text{L}}$ de fluorescence. La détermination de l'intensité absolue des principales raies de conversion faite au paragraphe précédent permet une estimation des rendements moyens Auger L et de fluorescence. Soit I l'ionisation dans l'ensemble des trois sous-couches, c'est-à-dire le nombre de vacances produites par désintégration. I comprend :

- a) un terme i , nombre de vacances correspondant à la conversion in-terme primaire.
- b) un terme i' , nombre de vacances dues au réarrangement consécutif à k vacances primaires par désintégration dans la couche K.

Si u représente le nombre d'électrons L impliqués dans le réarrangement électronique lors d'une vacance K, nous écrivons :

Pics	Energie expérimentale	Attribution	Energie Théorique
1	6,9	$L_{III} M M_I III$	6,942
	7,3	$L_{III} M M_{II} III$	7,302
2	8,1	$L_{III} M M_{II} V$	8,036
		$L_{III} M M_{III} III$	8,085
3	8,6	$L_{III} M M_{III} IV$	8,648
3'	8,8	$L_{III} M M_{III} V$	8,819
4	9,2	$L_{III} M M_{IV} IV$	9,198
4'	9,4	$L_{III} M M_{IV} V$	9,369
5	9,8	$L_{II} M M_{II} II$	9,867
		$L M M_I I I$	9,914
6	10,7	$L_{II} M M_{II} III$	10,694
7	11,3	$L_{II} M M_{II} IV$	11,257
		$L_{II} M M_{II} V$	11,428
8	12,1	$L_{II} M M_{III} IV$	12,040
		$L_{II} M M_{III} V$	12,211
9	12,6	$L_{II} M M_{IV} IV$	12,590
		$L_{II} M M_{IV} V$	12,761
10	13,6 à 16,5	$L_{II} MN + (L_1 MM)$	

$$i' = u.k.$$

Quand une telle vacance se produit, on sait qu'un électron L peut venir remplir la couche K libérant une énergie qui peut se traduire par émission soit de raies $X K\alpha$, soit d'électrons Auger KLL ou KLX.

Désignons par $\bar{\omega}_K$, le rendement de fluorescence de la couche K.

c_1 et c_2 , les rapports d'intensité des Auger KLL et KLX respectivement à l'intensité totale des Auger K.

c , l'intensité relative des raies $X K\alpha$ par rapport à l'ensemble des raies $X K$. Nous pouvons écrire :

$$u = 2 (1 - \bar{\omega}_K) c_1 + (1 - \bar{\omega}_K) c_2 + \bar{\omega}_K c.$$

Le rendement de fluorescence $\bar{\omega}_K$, pour $Z = 90$, est pris égal à 0,962 ; l'ordre de grandeur de c_1 et c_2 , déterminé d'après un graphique donné dans les tables de G.T. Nijgh, A.H. Wapstra et R. Van Lieshout (32) est 0,6 et 0,4 respectivement. c est donné dans ces mêmes tables et pris égal à 0,755.

Nous en tirons $u = 0,79 \pm 0,01$.

Quant au nombre k de vacances primaires par désintégration dans la couche K, nous le déterminons à partir des résultats de S. Bjørnholm (93) par comparaison des raies de conversion K avec les raies L du γ de 57,8 keV dont l'intensité relative a été estimée. Nous trouvons $k = 0,011$, d'où $i' = 0,009$.

Vu sa faible importance et la minime contribution des termes relatifs aux transitions Auger dans la détermination de u , nous pouvons nous permettre de négliger ces transitions et donc de décomposer ce nombre en ses composantes par rapport aux trois sous-couches, connaissant le rapport des intensités $K \alpha_1$ et $K \alpha_2$, nous en déduisons

$$i'_1 = 0, \quad i'_2 = 0,003, \quad i'_3 = 0,006.$$

Les vacances dues à la conversion interne sont données directement par le tracé des raies de conversion dont nous connaissons les intensités relatives. Nous trouvons :

$$i_1 = 0,060 \pm 0,005; \quad i_2 = 0,326 \pm 0,010;$$

$$i_3 = 0,270 \pm 0,010.$$

Brodie (80) dans une étude parallèle a donné les valeurs :

$$i_1 = 0,0375, \quad i_2 = 0,289; \quad i_3 = 0,223.$$

Ces valeurs nous semblent sous-estimées ; l'aspect du spectre donné par Brodie montre que ses sources sont épaisses et la correction pour tenir compte de cette épaisseur est peu sûre.

D'où en désignant par n_1 , n_2 , n_3 l'ionisation primaire (compte non tenu de l'effet Coster-Kronig) dans la couche L, nous obtenons :

$$n_1 = 0,060 \pm 0,006$$

$$n_2 = 0,329 \pm 0,011$$

$$n_3 = 0,276 \pm 0,011$$

$$\text{soit pour } I = n_1 + n_2 + n_3 = 0,665 \pm 0,015.$$

Désignons par A et F le nombre total d'électrons Auger L et de radiations XL par désintégration. Nous avons $I = A + F$; A peut se déterminer aisément par mesure de l'aire sous le spectre Auger, ce qui donne $A = 0,397$. Nous en tirons $F = 0,268$, soit pour le rendement moyen de fluorescence $\overline{\omega}_L$:

$$\overline{\omega}_L = \frac{F}{I} = 0,40.$$

Cette valeur du nombre de photons L émis par désintégration du MsTh_2 , soit $0,27 \pm 0,03$ est en bon accord avec le nombre $0,30 \pm 0,06$ trouvé par M. Lecoin, Melle Perey et Riou (29).

Le rendement de fluorescence $\overline{\omega}_L$ correspond lui-même très bien avec la valeur donnée par Kinsey (0,40) (47), bien que les ionisations primaires relatives soient très différentes.

Rendements Auger partiels. Les rendements partiels Auger $L a_1$, a_2 et a_3 et de fluorescence $\overline{\omega}_1$, $\overline{\omega}_2$, $\overline{\omega}_3$ ne dépendent pas du mode d'excitation et sont donc caractéristiques de l'atome. Nous avons essayé de les déterminer, mais le nombre des hypothèses que nous sommes contraints d'émettre et l'incertitude sur le partage des raies Auger rendent assez aléatoires les résultats.

L'analyse du spectre Auger La été conduite de la façon suivante : nous avons pu séparer trois groupes relativement distincts dont les intensités sont données dans le tableau ci-dessous ; nous en déduisons ensuite, de façon approximative les intensités l_1 , l_2 et l_3 relatives aux différentes sous-couches.

$$\text{Leurs valeurs sont : } (l_1 = 0,014 \pm 0,007)$$

$$l_2 = 0,156$$

$$l_3 = 0,226$$

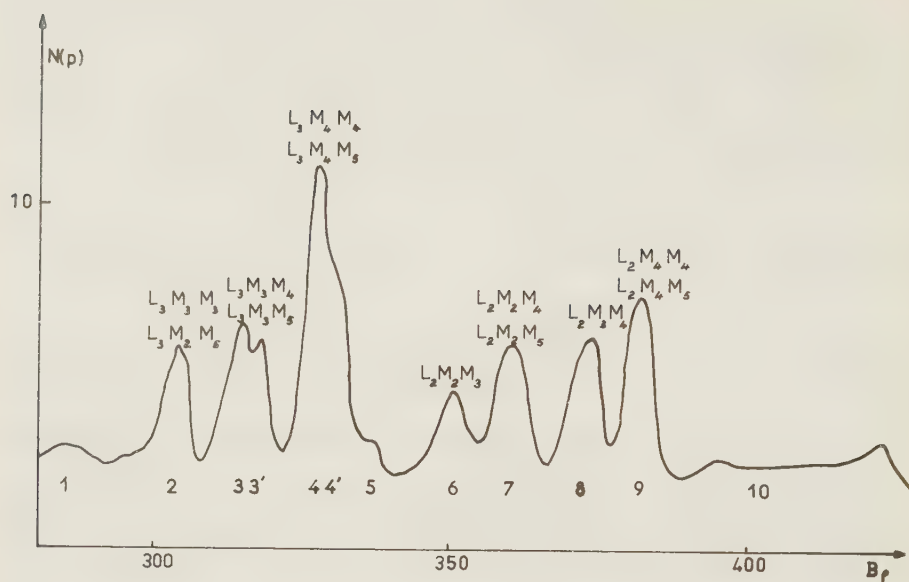


Figure 18 : Electrons Auger L consécutifs à la désintégration du $Ms Th_2$

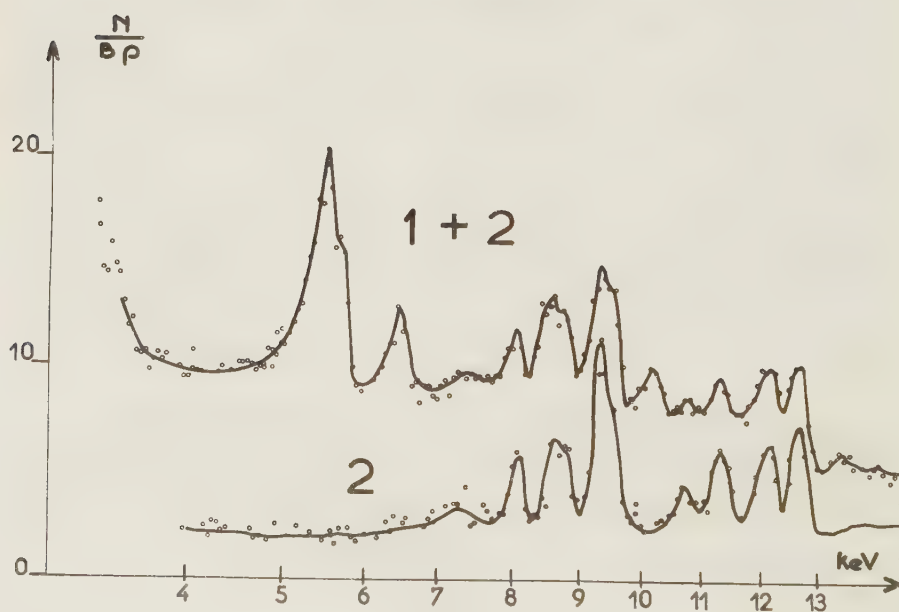


Figure 19 : Spectre du $Ms Th_1$ en équilibre avec le $Ms Th_2$ (1 + 2).
A titre de comparaison, figure également le spectre du
 $Ms Th_2$ seul (2).

Attribution	Intensité
$\left. \begin{array}{l} L_{III} \text{ M M} \\ L_{II} \text{ M M} \\ L_{III} \text{ M N} \\ (L_I \text{ M M}) \end{array} \right\}$	0,184
$\left. \begin{array}{l} L_{II} \text{ M N} \\ (L_I \text{ M M}) \end{array} \right\}$	0,156
$\left. \begin{array}{l} L_{II} \text{ M N} \\ (L_I \text{ M M}) \end{array} \right\}$	0,056

Nous disposons, pour la détermination des différents rendements, des relations vues au chapitre II, avec cependant la simplification apportée par les 3 équations :

$$a_1 n_1 = I_1$$

$$a_2 (n_2 + f_{12} n_1) = I_2$$

$$a_3 \left[n_3 + f_{13} n_1 + f_{23} (n_2 + f_{12} n_1) \right] = I_3$$

Kinsey a déterminé les rendements de fluorescence partiels pour huit éléments (de $Z = 73$ à $Z = 92$) en faisant le rapport de la largeur de radiation Γ_r de chaque sous-couche à la largeur totale Γ de la sous-couche. Pour $Z = 90$, ses résultats sont les suivants (en supposant, faute de renseignements $f_{12} = f_{23} = 0$) :

$$\bar{\omega}_1 = 0,15 ; \bar{\omega}_2 = 0,56 ; \bar{\omega}_3 = 0,39 \quad \text{et} \quad f_{13} = 0,60.$$

Ces données ne satisfont pas nos propres équations. Il nous a semblé que la principale raison en était d'avoir admis pour f_{23} dont on note cependant l'augmentation à partir de $Z = 90$ la valeur zéro. Nous avons conservé la seconde hypothèse, $f_{12} = 0$, et adopté les valeurs de :

$\bar{\omega}_3 = 0,39$ (en assez bon accord avec la valeur 0,42 de Stephenson (101) et de f_{13} . Les équations précédentes donnent alors les résultats suivants :

$$f_{23} = 0,17 \pm 0,07 \quad a_2 = 0,47 \pm 0,02 \quad \bar{\omega}_2 = 0,36 \pm 0,09$$

Il est facile d'estimer la sensibilité des résultats aux hypothèses adoptées ; en admettant une incertitude raisonnable de 0,03 sur $\bar{\omega}_3$ et sur f_{13} , nous trouvons une limite extrême d'erreur sur f_{23} et sur $\bar{\omega}_2$ inférieure à 0,06. Quant à

a_2 , il est assez peu sensible aux hypothèses et erreurs sur les autres termes. Les limites que nous nous sommes finalement fixées tiennent compte des incertitudes dues aux déterminations expérimentales.

Le nombre trouvé pour le rendement Auger a_1 (soit 0,22) n'a, évidemment, vu l'incertitude sur l_1 , qu'un caractère indicatif.

Brodie a étudié également la région des Auger L avec un spectromètre magnétique, à lentille muni d'une postaccélération. Mais les sources utilisées ($0,1 \text{ mg/cm}^2$) nécessitent des corrections importantes de selfabsorption. Le nombre $A d^{\#}$ électrons Auger L par désintégration qu'il trouve expérimentalement est de 0,22 seulement, bien inférieur à son estimation (0,32) basée sur les données de Massey et Burhop pour les intensités relatives des raies XK, les rendements de fluorescence de Kinsey et ses propres valeurs pour l'ionisation primaire.

Nous pouvons maintenant établir une comparaison des divers rendements obtenus pour les noyaux de Ra E et de Rd Th lors du réarrangement de la couche L.

	a_1	a_2	a_3	f_{12}	f_{13}	f_{23}	$\overline{\omega}_1$	$\overline{\omega}_2$	$\overline{\omega}_3$
Ra E (Z=83)	0,11	0,68	0,66	0,16	0,62	(0)	0,11	0,32	0,34
Rd Th (Z=90)	0,22	0,47	[0,61]	(0)	[0,60]	0,17	0,18	0,36	[0,39]

[] : valeurs empruntées à Kinsey
() : hypothèses admises.

Les hypothèses faites pour f_{12} et f_{23} peuvent paraître contradictoires. En fait, on doit remarquer que f_{12} doit baisser sensiblement vers $Z = 90$ par suite de l'affaiblissement des transitions $L_I L_{II} N$ et que f_{23} doit augmenter par suite de l'apparition pour $Z = 90$ des transitions $L_{II} L_{III} M_V$.

D'autre part, les calculs pour le Ra E sont très peu sensibles à f_{23} par suite du petit nombre de vacances L_{II} ; en prenant par exemple $f_{23} = 0,10$, il n'y a aucun changement pour $a_1, \overline{\omega}_1, a_3, \overline{\omega}_3$ et une légère diminution de f_{13} (0,60). De même, les calculs pour le Rd Th sont peu sensibles à f_{12} (et aussi d'ailleurs à f_{13}) à cause du petit nombre de vacances primaires L_I . La précision ne pourra être augmentée que lorsque l'on saura mieux décomposer le spectre Auger L, très complexe, et faire des mesures absolues plus précises des nombres de photons.

À titre de conclusion pour notre étude du Ms Th₂, nous pouvons estimer le nombre total des électrons émis par désintégration, y compris les électrons nucléaires, mais non compris les électrons Auger M ou N et Coster-Kronig. Le

résultat de M. Lecoin, M. Perey et J. Teillac (28) est de 2 électrons par désintégration, comme nous l'avons déjà signalé. Cette donnée correspondant vraisemblablement aux restrictions que nous fixons, est indirectement confirmée par Brodie. Le calcul est rapide ; nous connaissons en effet le rapport $\frac{I}{M+N+O}$ des raies de conversion du γ de 57,8 kev. En négligeant les autres raies, M, N ou O, nous trouvons qu'il y a au total 0,857 électrons de conversion par désintégration. A ces électrons, s'ajoutent les électrons Auger L et les β nucléaires, soit $0,86 + 0,40 + 1,00 = 2,26$ électrons par désintégration. Ce résultat est en accord assez satisfaisant avec celui des précédents auteurs.

IV. ETUDE DU SPECTRE ELECTRONIQUE $MsTh_1 + MsTh_2$ EN COURS DE CROISSANCE ET A L'EQUILIBRE.

L'exploration du spectre électronique à l'aide de sources de $MsTh_1$ et $MsTh_2$, en équilibre ou non, fut effectuée dans une large zone de 2 à 175 kev ; l'étude minutieuse et répétée s'est limitée à la région d'énergie inférieure à 60 kev, spécialement la région des électrons Auger L.

Les sources utilisées avaient toutes 4 mm de large, le support était en mica (1 à 3 mg/cm²), recouvert de graphite ou de titane. La postaccélération nécessaire fut maintenue à 1000 volts pour la région la plus basse ; les fenêtres du compteur étaient en formvar supporté par des grilles de lektromesh à 50 %, leur "cut-off" se situait vers 1,5 kev.

Le pouvoir séparateur théorique était de 0,6 %. Le pouvoir séparateur effectif, mesuré toujours sur la raie L_{III} du γ de 57,8 kev, varia, suivant les sources, de 0,7 à 1,1 %. La surface de source était de 80 mm² pour une activité de l'ordre de 5 microcuries. Avec cette activité, l'ouverture de l'appareil permettait des comptages assez rapides avec une bonne statistique. L'expérience a montré qu'il était vain de chercher à améliorer le pouvoir de résolution théorique en réduisant la largeur de source pour une activité globale identique, l'augmentation de l'épaisseur de la source provoque en fait souvent une diminution du pouvoir séparateur effectif. Le nombre des sources utilisables fut d'environ 15 ; cinq d'entre elles méritèrent le tracé complet d'une vaste zone à l'équilibre. Le nombre assez grand de ces sources utilisées pour les mêmes tracés de spectre avec des pouvoirs de résolution dont la variété n'était fonction que de l'épaisseur de la source, mit en évidence l'affaiblissement considérable des raies électroniques de très basse énergie avec l'augmentation de l'épaisseur du dépôt actif (voir figure 21). Cette constatation nous conduit à une grande prudence dans l'estimation de l'intensité relative de ces raies ; nous reviendrons plus loin sur ce point.

Le tracé des spectres comprend d'abord une étude rapide et limitée, en cours de croissance du $MsTh_2$, de certaines régions surchargées en raies, en

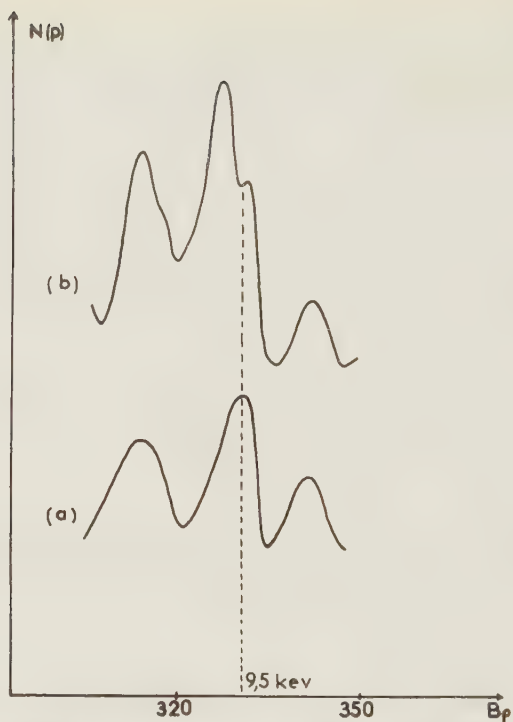


Figure 20 : Décalages de pics en cours de croissance du $Ms\ Th_2$ au sein d'une source de $Ms\ Th_1$

(a) : âge de la source : environ 2 heures.

(b) : âge de la source : trente heures.

Le décalage le plus important signale la raie de 9,5 Kev.

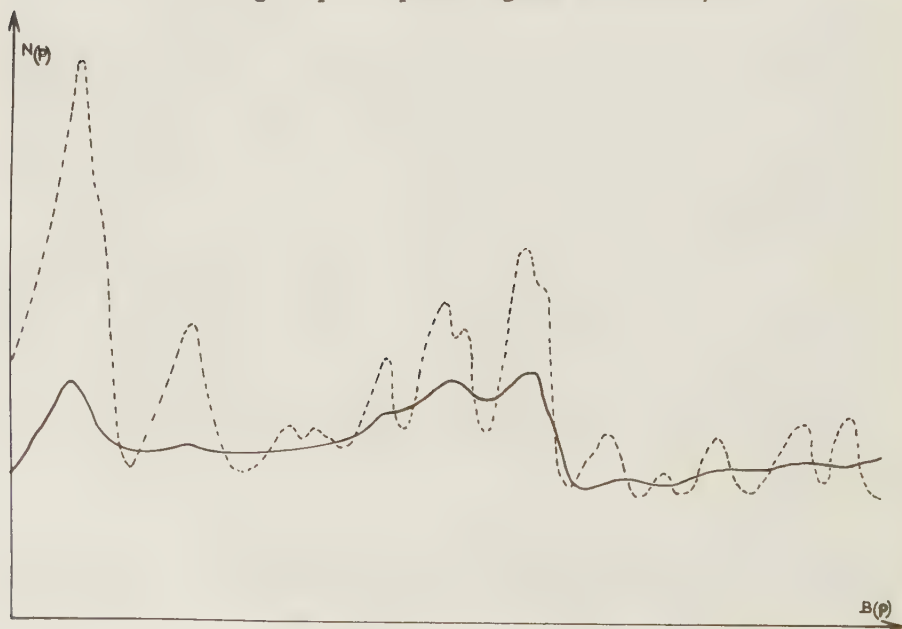


Figure 21 : Aplatissement des raies dû à l'épaisseur de la somme.
En trait plein, tracé effectué avec une source épaisse.

particulier la région des électrons Auger L ; ce travail a permis de déceler certains décalages de pics dans cette dernière région, attribuables à la présence de raies appartenant au MsTh_1 , très vite noyées dans l'ensemble important du groupe Auger (Voir figure 20).

Le tracé soigné de tout le spectre est ensuite effectué dès que l'équilibre $\text{MsTh}_1 - \text{MsTh}_2$ est pratiquement atteint, c'est-à-dire après 24 heures. Des contrôles par tracé du même spectre après une semaine, un mois et même un an permettent d'estimer l'importance des impuretés, en particulier du dépôt actif du radon.

Le spectre ainsi étudié est représenté sur la figure (19). Nous constatons immédiatement par comparaison avec le spectre du MsTh_2 seul déjà étudié, l'existence d'un spectre continu important nettement visible et la présence de deux raies intenses à 5,5 et 6,5 kev qui ne peuvent être que des raies de conversion. Au milieu du groupe Auger-L se trouve également une raie plus faible à 10,2 kev. De plus, le décalage des pics observé dans l'étude en cours de croissance permet de supposer l'existence d'une raie à 9,5 kev (figure 20) et aussi sans doute à 8,5 kev. Nous avons cherché à vérifier la présence de ces raies appartenant au MsTh_1 en appliquant la méthode des moindres carrés aux comptages effectués en ces régions en fonction du temps. Cette méthode permet la reconstitution du spectre du MsTh_1 seul, en tenant compte en plus de la croissance gênante des produits du dépôt actif du radon. Nous en avons rappelé le principe dans un chapitre précédent, nous allons seulement en préciser l'application ici, car elle va servir sous une forme analogue à la détermination des ordonnées des diagrammes de Kurie lors de l'étude du spectre continu. L'évolution du taux de comptage n_i en fonction du temps dans une de nos sources peut se représenter pour une énergie donnée des électrons, par l'équation :

$$n_i = a + b (1 - e^{-\lambda_1 (t_i - \theta_0)}) + c (1 - e^{-\lambda_2 (t_i - t_0)})$$

dans laquelle :

a est la fraction de ce taux relative au MsTh_1

b celle relative au MsTh_2 , de constante radio-active λ_1 , quand l'équilibre sera atteint.

θ_0 est l'époque origine de séparation "théorique" du MsTh_2 et du MsTh_1 . C'est une inconnue de notre système ; nous ne connaissons pas, en effet, suffisamment notre rendement d'extraction à la TTA pour déterminer ce temps avec précision. Nous l'obtiendrons en appliquant la méthode à des zones, d'énergie suffisamment élevée pour qu'alors a soit certainement nul, et exemptes de raies, donc de pente faible, pour limiter l'erreur due à une éventuelle dérive. Plusieurs points sont choisis dans ces zones pour assumer cette détermination.

Le dernier terme de l'équation est relatif au dépôt actif du radon ; t_0 étant l'époque de l'évaporation du produit radio-actif dans le vide représente le temps origine de la croissance du dépôt avec la constante λ_2 du radon. Bien que la source soit maintenue pendant toute la durée des comptages dans le vide, des essais ont permis de constater effectivement la croissance du dépôt actif avec la période du radon. On montre aisément que ceci revient à admettre qu'une fraction constante des atomes de radon produits reste adsorbée dans la source. Il est entendu que nous négligeons dans cette région de basse énergie toute contribution due au ^{226}Ra . Le γ le plus intense (187 kev) émis lors du réarrangement du noyau ^{222}Rn n'intervient que dans moins de 6 % des désintégrations et son coefficient de conversion total est d'environ 0,20.

Les inconnues sont donc, en plus de Θ_0 , a , b et c . Si nous multiplions les nombres de comptages pour un point donné du spectre en étudiant la source plus longtemps, nous augmentons en théorie la précision de la méthode, mais aussi l'importance du dernier terme dû au radon dont on craint, malgré nos essais préalables, qu'il ne suive pas dans les conditions expérimentales imposées la courbe d'évolution attendue. Un bon contrôle a été exercé en appliquant la méthode pour une source d'une part aux 22 premiers comptages (l'âge de la source est alors de 27 heures) et d'autre part aux 40 comptages totaux (âge de la source : 170 heures). Les modifications apportées aux valeurs de a sont très faibles.

Le calcul de l'approximation des résultats, joint aux difficultés expérimentales, a limité l'exploitation de la méthode dans la région des électrons Auger L. Nous confirmons toutefois la présence de raies vers 8,5 , 9,5 et peut-être 12 kev, de même que la forte remontée vers 2 kev.

Plus loin en énergie dans le spectre continu étudié à l'équilibre, nous décelons encore une très faible raie à 22 kev, au-delà de la raie K de conversion déjà signalée du γ de 129 kev du MsTh_2 . Nous dressons le tableau récapitulatif ci-dessous

De cette première étude, nous tirons donc les conclusions suivantes : La présence d'un spectre continu nettement visible attribuable au MsTh_1 et s'étendant nettement au-delà du groupe Auger L du MsTh_2 est en contradiction avec l'affirmation de M. LECOIN, Melle PEREY et J. TELLAC (28) selon laquelle 85 % des électrons de désintégration auraient une énergie inférieure à 1,5 kev. Les deux raies de conversion à 5,5 et 6,5 kev, et les autres au sein du groupe Auger, par contre, confirment leurs résultats (raies à 3,7 et peut-être 12 kev) sur l'existence de gammas, avec toutefois une différence sur l'énergie.

Nous nous trouvons donc aussi en opposition avec la conclusion d'un spectre β simple proposée par GOETZE et HUSTER (30), à la suite également des travaux de LEE et LIBBY (4).

RAIES DE CONVERSION DU MsTh_1			
Energie en Kev	Observations	Intensité (pour 100 désintégrations)	Attribution
5,5	large, probable- ment complexe	22 ⁺⁺	$M_{\text{I}} M_{\text{II}} \left[\gamma : 10,3 \text{ kev}, M_1 \right]$
6,5	idem	5 ⁺⁺	$\left\{ M_{\text{III}} \left[\gamma : 10,3 \text{ kev} \right] \right.$ $\left. L_{\text{I}} \left[\gamma : 26,3 \text{ kev}, M_2 \right] \right\}$
8,5	+	< 1	Auger L
9,5	+	< 1	$N_{\text{I, II, III}} \left[\gamma : 10,3 \text{ kev} \right]$
10,2	visible sur le spectre à l'équilibre	$\sim 1,5$	$\left\{ L_{\text{III}} \left[\gamma : 26,3 \text{ kev} \right] \right.$ $\left. O \left[\gamma : 10,3 \text{ kev} \right] \right\}$
12	+	< 1	$M_{\text{III}} \left[\gamma : 16 \text{ kev}, E_1 + M_2 \right]$
22	visible sur le spectre à l'équilibre	< 1	$M_{\text{III}} \left[\gamma : 26,3 \text{ kev} \right]$

+ : raies déduites de la déformation des pics Auger L en cours de croissance. Les raies 8,5 et 12 kev sont peu nettes.
Celle de 9,5 kev est très nette.

++ : l'épaisseur de la source peut avoir diminué considérablement ces chiffres.

V. ETUDE DU SPECTRE CONTINU - DIAGRAMME DE KURIE -

La nécessité d'une étude détaillée du spectre continu devenait évidente. Nous venons de voir les possibilités offertes dans ce domaine par la méthode des moindres carrés. Pour une source donnée, nous choisissons une vingtaine de points se répartissant dans le spectre de 7 à 60 kev, situés dans des régions exemptes de raies ou de pente faible. Chaque point est compté une quarantaine de fois en cours de croissance à intervalles réguliers sur un temps de l'ordre de 150 heures.

Nous en tirons le taux de comptage correspondant au MsTh_1 seul, avec une incertitude que le calcul fixe de 3 % à 20 % suivant les points envisagés. Les sources utilisées ici sont préparées suivant la technique habituelle. Mais

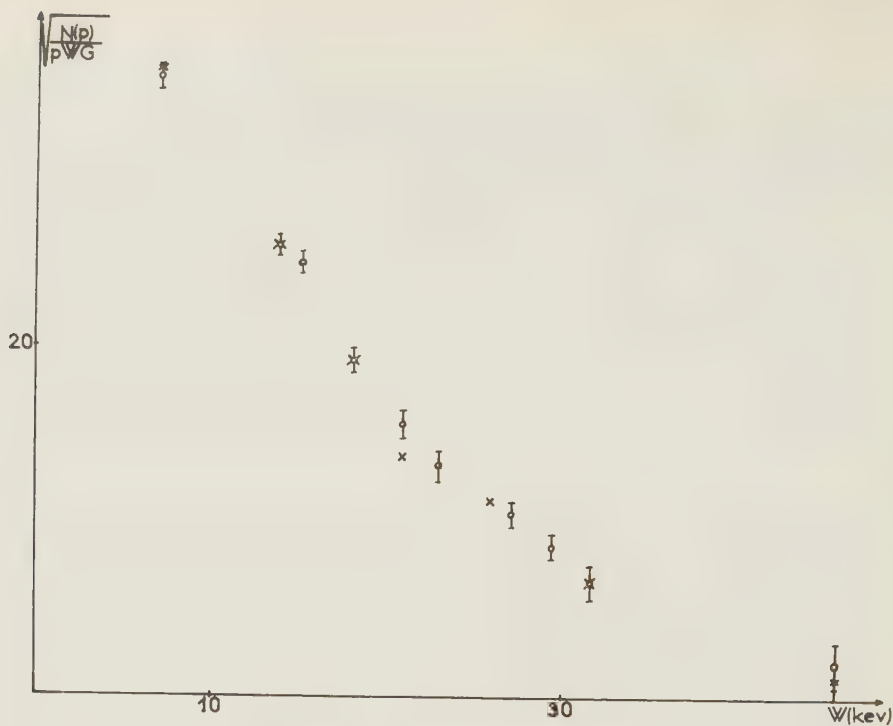


Figure 22 : Diagramme de Kurie -

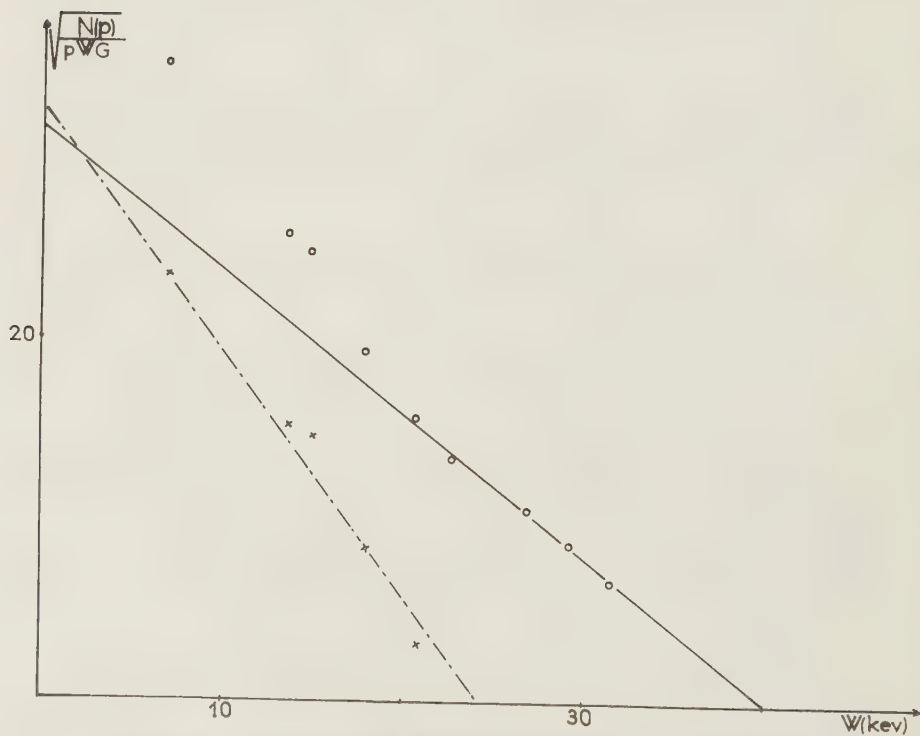


Figure 23 : Décomposition faisant apparaître les 2 spectres partiels.

comme nous n'avons pas intérêt à utiliser un grand pouvoir séparateur qui présenterait l'inconvénient de limiter les taux de comptages, les diaphragmes et la fente du compteur sont ouverts au maximum, les sources elles-mêmes ont une largeur de 6 mm, soit une surface de 1,2 cm². Toutes les précautions sont prises pour les rendre aussi fines que possible. Le pouvoir séparateur effectif est alors de 0,9 % environ sur la raie L_{II} du γ de 57,8 keV du $MsTh_2$, et on doit s'attendre à ce qu'il soit moins bon pour les raies de basse énergie.

Si $N(p)$ représente le taux de comptage d'électrons de moment p , nous pouvons écrire :

$$N(p) = K p^2 (W_0 - W)^2 F \cdot C, \quad K \text{ étant une constante indépendante de l'énergie } W \text{ des électrons, } W_0 \text{ est l'énergie maximum du spectre, } F \text{ la fonction de Fermi et } C \text{ le facteur de forme variable suivant le degré d'interdiction.}$$

Faute d'informations plus précises, nous devons, au départ, du moins, supposer la transition permise, c'est-à-dire le facteur de forme indépendant de l'énergie. L'allure de la courbe obtenue en portant

$$\left[\frac{N(p)}{p^2 F} \right]^{1/2} \quad \text{ou} \quad \left[\frac{N(p)}{p W G} \right]^{1/2} \quad \text{avec } G = \frac{p}{W} F$$

en fonction de $(W_0 - W)$ permet de déterminer W_0 et de déceler si le spectre est complexe ou non. La figure 22 représente les résultats observés pour deux sources avec les barres d'erreur calculée pour chaque point. Les autres sources fournissent des résultats sensiblement identiques.

Nous remarquons sur la courbe une cassure assez nette qu'il est quand même difficile d'expliquer entièrement par la montée de la courbe aux basses énergies souvent observée dans des cas analogues par suite de l'épaisseur de la source. L'alignement des points de plus haute énergie fixerait une énergie maximum W_0 vers 40 keV, sans pouvoir toutefois écarter la possibilité d'un spectre peu intense plus énergétique, la précision sur les points d'énergie plus élevée devenant évidemment faible. En éliminant cette hypothèse, nous poursuivons la décomposition de la courbe suivant la méthode classique. Par soustraction de ce spectre d'énergie maximum de 40 keV, un deuxième spectre moins intense apparaît, dont l'énergie maximum serait fixée vers 24 keV, comme le montre la figure 23. Il serait tentant de tracer deux spectres dont l'énergie maximum diffère de 10,3 keV (énergie de la transition γ probable, voir tableau et plus loin). Cependant cela paraît impossible même compte tenu de l'incertitude sur les points à basse énergie. Nous reconstituons alors aisément les spectres pour en déterminer les surfaces relatives. Ce deuxième spectre aurait une intensité qui oscille suivant les cas autour de 30 % de l'intensité globale. Cette intensité totale des deux spectres du $MsTh_1$ est alors comparée à celle du spectre continu du $MsTh_2$ à l'équilibre, que l'on peut déterminer, on l'a vu, par les raies de conversion du γ de 57,8 KeV dont nous connaissons l'importance

relative. L'accord est excellent, ce qui constitue une confirmation de l'existence de ce deuxième spectre. Dans l'hypothèse de ces deux spectres β d'intensités 70 % et 30 %, nous calculons les log (ft), d'après la période du $Ms Th_1$ (6,7 années). Il vient :

$$\begin{array}{ll} \log ft = 6,4 & \text{pour le plus énergétique } (W_0 = 40 \text{ KeV}) \\ \text{et } \log ft = 6,1 & \text{pour le second } (W_0 = 24 \text{ KeV}) \end{array}$$

VI. SCHEMAS DE DESINTEGRATION PROPOSES POUR LE $Ms Th_1$

L'étude précédente conduit donc à admettre l'existence de deux spectres partiels, séparés par une énergie de 16 KeV environ. Or si nous essayons d'expliquer l'existence des deux raies de conversion importantes à 5,5 et 6,5 KeV, nous rencontrons les deux seules interprétations suivantes :

a) Ce sont les raies de conversion $M_I + M_{II}$ et M_{III} d'un γ de 10,3 KeV la raie à 9,5 KeV en serait une raie N de conversion.

b) Ce sont les raies N et O d'un γ de 6,7 KeV

Nous ne pensons pas en effet possible de les interpréter comme des raies L, vu leur importance par rapport à l'éventuel rayonnement de fluorescence XL observé (0,04 photon L par désintégration d'après M. Lecoin, M. Perey et M. Riou (29), beaucoup moins d'après W. Beckmann, cité par Goetze et Huster (30).

L'étude du diagramme de Kurie fait donc apparaître un γ d'une énergie voisine de 16 KeV en plus de cet autre de 10,3 ou 6,7 KeV.

L'examen des spins et parités des niveaux et des intensités relatives des transitions, déterminés par Bjørnholm au sujet du $Ms Th_2$ peut amener un important éclaircissement. Le niveau fondamental du $Ms Th_1$ (pair-pair) étant probablement un O^+ , comme celui du radiothorium, on peut penser, en première approximation que, quelle que soit le spin et la parité du niveau fondamental du $Ms Th_2$, les log (ft) des deux transitions directes successives sont égaux. Or Bjørnholm (93) n'a pu mettre en évidence aucun spectre β arrivant directement à l'état stable du noyau ^{228}Th (voir schéma, une branche β d'environ 12 % arrive au niveau de 58 KeV). Si nous supposons une intensité maximum de 1 % par exemple, on est conduit à un log (ft) de l'ordre de 10, ce qui amènerait dans le cas du $Ms Th_1$ une période partielle de l'ordre de 10^4 années, soit un branchement voisin de 10^{-4} .

Nous sommes donc en droit d'admettre que le spectre β plus intense représentant au moins 70 % des désintégrations, d'énergie maximum 40 KeV, aboutit sur un état excité du noyau du $Ms Th_2$, le retour à l'équilibre s'opérant par le γ de 10,3 ou 6,7 KeV.

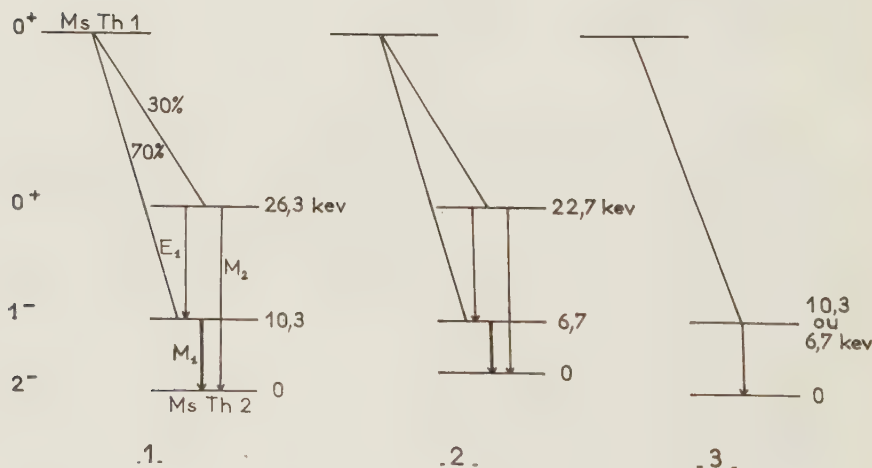
Ce γ de faible énergie étant certainement très converti (nous trouvons par extrapolation des tables de Rose dans le cas d'une transition dipolaire magnétique un coefficient de conversion supérieur à 1000 pour l'ensemble de la couche M, pour une énergie de 10,3 KeV), il est peut-être possible qu'il n'ait pas été détecté au compteur proportionnel lors des études de Goetze et Huster (30), l'énergie enregistrée étant la somme électron + gamma. La déviation résultante dans le tracé de la droite de Kurie est probablement assez petite. Par contre, nous ne pourrions expliquer les résultats de Lee et Libby (4) que par l'existence d'un spectre β direct plus intense que ne nous laisse supposer l'estimation précédente. La méthode d'absorption utilisée toutefois ne paraît pas pouvoir donner une grande précision sur la limite d'énergie. Malgré tout, ces deux groupes de chercheurs s'accordant sur une énergie maximum de l'ordre de 50 KeV, le γ de 10,3 KeV devient plus probable que celui de 6,7 KeV.

Mais une difficulté surgit alors, car les seules raies de conversion M, N et O de ce γ de 10,3 KeV, très converti et nécessairement très intense, doivent représenter une aire voisine de l'aire du spectre continu. Ce n'est pas du tout le cas, leur importance relative pour les sources les mieux structurées est de 30 % environ. On reviendra plus loin sur cette difficulté. A cause surtout de ce fait, l'hypothèse d'un γ de 6,7 KeV dont les raies M de conversion ne nous sont pas accessibles demeure plausible. La forte remontée vers 2-3 KeV constatée lors des études en cours de croissance, au sein du très important groupe Auger M du ^{232}Th s'explique par l'existence d'électrons Auger M du ^{232}Th , dans les deux hypothèses. Une remontée analogue s'observe pour le RaD (voir plus haut) et pour le dépôt actif du thorium (41). Une partie de cette remontée vient aussi des électrons δ projetés par les particules α du ^{226}Ra .

L'existence du γ de 16 KeV et éventuellement du cross-over de 26,3 KeV (ou 22,7 KeV) n'est vérifiée surtout que par nos études en cours de croissance. Les attributions proposées aux différentes raies figurent dans le tableau précédent. Les raies vers 12 KeV seraient les raies de conversion M du premier ; la raie de 6,5 KeV pourrait comprendre la raie L_I du cross-over de 26,3 KeV, de même que la raie bien visible à 10,3 KeV serait la raie L_{III} ; la très faible raie du spectre à l'équilibre en serait une raie M. L'ensemble de ce spectre de conversion de γ qui doivent être très convertis pour avoir échappé à l'observation représente difficilement les 30 % trouvés pour l'intensité du niveau ; il est vrai que le γ de 16 KeV peut avoir une conversion L_{III} importante. Mais dans ces conditions, on se heurte à une autre difficulté venant de ces abondantes conversions dans la couche L. Les électrons Auger, surtout les Auger L_{III} devraient être assez abondants, ils expliqueraient d'ailleurs les raies trouvées à 8,5 KeV. Parallèlement toutefois, il devrait y avoir un rayonnement de fluorescence LX. Nous avons vu que le nombre de ces rayons XL est trouvé égal à 4 pour 100 désintégrations d'après M. Lecoine et al. (29), chiffre minimisé par d'autres (30). Cette donnée correspondrait à environ 10 électrons par désintégrations. Nous en concluons que notre estimation de l'importance de ce spectre β mou de 24 KeV

est surestimée, cela peut être dû à l'épaisseur de la source.

Nous sommes ainsi conduits au schéma suivant (1). Les caractères de multipolarité des transitions sont choisis d'après les considérations suivantes. Pour le γ de 10,3 KeV, une forte conversion $M_I M_{III}$ indiquerait une transition M_I . Pour la transition de 26 KeV, la conversion est prédominante dans la couche M_{III} ; pour les couches L, la conversion L_I est masquée par la raie M_{III} du 10,3 KeV, la conversion L_{II} est peu visible, la conversion L_{III} très nette, cela indique le caractère M_2 . Il en résulte le caractère E_1 pour la transition de 16 KeV; en fait un mélange $E_1 + M_2$ permet d'interpréter la conversion prédominante dans la couche M_{III} . Quant aux log (ft) des deux transitions β du $MsTh_1$, nous avons vu qu'ils sont assez voisins. Cela est bien interprété en admettant la séquence 2^- , 1^- , 0^+ pour les spins des niveaux du $MsTh_2$. Le spin 2^- de l'état fondamental n'est pas en désaccord avec les résultats de Björnholm pour les branchements β du $MsTh_2$, mais nécessite de faire l'hypothèse que la transition $2^- \rightarrow 0^+$ au niveau fondamental du $RdTh$ (comme celle du $MsTh_1$ au niveau fondamental du $MsTh_2$) est frappée d'une interdiction supplémentaire due à la transition entre des niveaux dont le nombre quantique de rotation K est différent. Le niveau fondamental du $MsTh_2$ pourrait appartenir à une bande de rotation $K = 2$.



Schémas de désintégration proposés.

Le spin 3^- de l'état fondamental, aussi acceptable pour l'interprétation du spectre β du $Ms\ Th_2$ l'est moins pour le spectre du $Ms\ Th_1$ la séquence $3^- 2^- 1^+$ donnant un $\log (ft)$ théorique trop grand pour la transition β au niveau 2^- . L'attribution de parités négatives à ces niveaux a été faite par analogie avec celle des niveaux de faible énergie de nombreux noyaux impair-impairs.

La première difficulté que pose l'adoption de ce schéma est la faiblesse des raies des transitions de 16 et 26,3 KeV. Elle peut être levée :

1) en admettant que l'intensité de la branche β de 24 KeV ait été surestimée comme on l'a dit plus haut

2) en admettant pour la transition de 16 KeV une conversion L_{III} donnant une raie à très basse énergie ($\sim 0,2$ KeV). Le coefficient de conversion est difficile à estimer, mais peut être assez élevé pour expliquer la faible intensité des raies M. Par contre, le nombre des photons L observés serait alors un peu faible. Un moyen de résoudre le problème serait de vérifier la présence du groupe Auger L, ce que nous n'avons pas pu vraiment faire à cause de la difficulté d'application de la méthode de croissance dans cette région.

La deuxième difficulté est l'intensité insuffisante des raies de conversion du γ de 10,3 KeV. Cette objection pourrait être également levée en admettant une transition β au fondamental. Cela est peu probable d'après l'interdiction attendue pour cette transition. Une explication plus vraisemblable est l'applatissage des raies de 5,5 et 6,5 KeV par l'épaisseur de la source. Cet affaiblissement considérable des raies de basse énergie en fonction de l'épaisseur de la source est illustré par la figure 21. Le spectre expérimental du $Ms\ Th_1$ déduit du spectre à l'équilibre $Ms\ Th_1 - Ms\ Th_2$ par soustraction du $Ms\ Th_2$ (spectre observé sur les sources de $Ms\ Th_2$ pur) montre une intensité un peu élevée en-dessous de ces raies, le pied des raies est sûrement très important dans cette région.

Par contre, ce schéma est probablement conciliable avec les résultats de Goetze et Huster (30). Ces auteurs n'indiquent pas l'erreur statistique de leurs résultats et la droite de Kurie qu'ils tracent résulte peut-être de la compensation entre diverses sources d'erreurs. D'ailleurs nous avons déjà dit qu'une seule transition β de forme permise ne saurait être admise pour le $Ms\ Th_1$ à cause de la différence de spin.

La difficulté de ces mesures, en particulier le faible pouvoir séparateur obtenu sur les raies de conversion à basse énergie, ne permet pas d'exclure d'autres hypothèses qui nous paraissent cependant moins probables et expliquer moins facilement l'ensemble des résultats. La première de ces hypothèses est traduite dans le schéma 2, identique au premier, mais avec une transition de 6,7 KeV entre les deux premiers niveaux. Les raies de 5,5 et 6,5 KeV seraient alors les

raies N et O. Les raies M à très basse énergie ne seraient pas visibles et on expliquerait alors l'intensité observée pour les raies de 5,5 et 6,5 KeV. La transition "cross-over" aurait alors 22,7 KeV et on comprend mal les raies de 9,5, 10,2, 12 et 22 KeV. Il est également plus difficile d'interpréter le résultat de Goetze et Huster. Ce schéma nous paraît donc à écarter.

Une deuxième hypothèse est la présence d'un seul spectre β , la courbe de notre diagramme de Kurie serait due à l'épaisseur de la source. Nous sommes conduits au schéma 3, l'énergie de la transition γ pouvant être de 10,3 ou 6,7 Kev. Cette dernière possibilité (6,7 Kev) est peu satisfaisante, car la présence des raies à 9,5 et 10,2 kev paraît certaine. La première ne peut être absolument exclue, il faudrait interpréter la faible intensité des raies de 5,5 et 6,5 kev par les mêmes raisons que plus haut. Cependant les raies de 8,5, 12 et 22 kev ne sont pas expliquées.

Interprétation des niveaux excités du MsTh_2 dans le schéma I.

Si nous admettons le schéma I proposé ci-dessous, nous pouvons essayer de comparer les niveaux excités du MsTh_2 à ceux des noyaux voisins et en chercher une interprétation.

Nous pouvons d'abord examiner les niveaux excités des deux noyaux pair-pairs qui encadrent le MsTh_2 , soit le MsTh_1 et le RdTh .



Le premier niveau excité du MsTh_1 , alimenté par la désintégration α du ^{232}Th est à 59 kev et a le caractère 2^+ , le premier niveau excité du RdTh est à 58 kev et possède aussi le caractère 2^+ . Nous avons donc des niveaux de rotation à la même énergie, ce qui montre que les moments d'inertie J des deux noyaux sont très voisins, donc que les deux noyaux ont des déformations du même ordre. Mais il n'est nullement certain que la déformation du noyau impair-impair intermédiaire soit la même.

Avec la séquence $2^- 1^- 0^+$ admise dans le schéma 1, nous ne pouvons interpréter les niveaux excités comme des niveaux de rotation, car les moments angulaires totaux I devraient être supérieurs à 2. Le premier niveau de rotation pourrait être au-dessus de 50 kev et n'être pas alimenté par la désintégration β du MsTh_1 . On sait que l'énergie des niveaux de rotation est donnée par :

$$E = \frac{\hbar^2}{2J} I(I+1) \quad \text{Pour les niveaux } 0^+ \ 2^+, \text{ il vient :}$$

$$\Delta E = \frac{\hbar^2}{2J} \cdot 6 \quad \text{Pour un niveau fondamental } K = I = 2 \text{ et un premier}$$

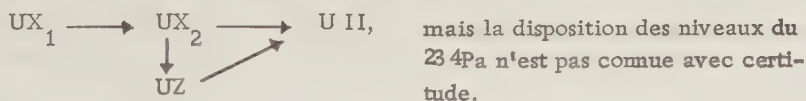
niveau de rotation $K = 2, I = 3$, il vient :

$$\Delta E = \frac{\hbar^2}{2J} \cdot 6, \text{ c'est-à-dire la même énergie pour le premier niveau}$$

excité. Si nous admettons une déformation du même ordre que pour les noyaux voisins, nous expliquons donc l'absence de niveaux de rotation dans la région étudiée.

Nous sommes donc amenés à interpréter les deux niveaux observés comme des niveaux de particules. Le MsTh_2 possède 89 protons et 139 neutrons, soit 7 protons et 13 neutrons en dehors des couches saturées $Z = 82$, $N = 126$. Il paraît impossible de faire une attribution sérieuse d'orbitales à ces nucléons et à plus forte raison de prédire leur couplage. Nous pouvons essayer de comparer la disposition des niveaux à celle des noyaux voisins. Malheureusement, les noyaux voisins, différant par quelques paires de neutrons ou de protons en plus ou en moins, sont très mal connus, car ils ne sont pas atteints par des radio-activités décelables ou d'intensité suffisante.

L'examen en particulier de ^{218}Fr , ^{220}Fr , ^{222}Fr , ^{222}Ac , ^{224}Ac , ^{226}Ac , ^{230}Ac , ^{228}Pa , ^{230}Pa , ^{232}Pa , ^{238}Np , ne fournit aucun renseignement intéressant. Le seul cas analogue étudié est celui de la chaîne



Nous pouvons aussi nous tourner vers une autre région de noyaux déformés, celle des terres rares, commençant après les couches saturées $Z = 50$, $N = 82$. Malheureusement, les noyaux connus ayant 57 protons (La) ont moins de 13 neutrons au-dessus de $N = 82$. Le seul assez bien connu est le ^{140}La ($Z = 50 + 7$, $N = 82 + 1$) qui possède la séquence $3^- 2^- 1^-$ (ou $4^- 3^- 1^-$), le premier niveau étant à 30 keV. Les autres noyaux à 57 protons sont très mal connus, pour les mêmes raisons que celles citées plus haut pour les noyaux lourds. Le ^{142}La semble avoir un état fondamental 2^- . Si l'on cherche au contraire des noyaux à 89 neutrons, on n'obtient pas de renseignements sur leurs niveaux excités ($^{150}_{61}\text{Pm}$: non obtenu à partir de $^{150}_{60}\text{Nd}$; $^{152}_{63}\text{Eu}$: entre deux isobares stables ; $^{154}_{65}\text{Tb}$: non obtenu à partir de $^{154}_{66}\text{Dy}$).

Enfin, les noyaux à $82 + 13 = 95$ neutrons sont également mal connus, nous pouvons seulement citer $^{160}_{65}\text{Tb}$, dont l'état fondamental est probablement 3^- .

On voit donc la difficulté de l'étude des niveaux excités des noyaux impair-impairs et l'intérêt qui s'y attache. L'accumulation des données de ce type paraît nécessaire pour fournir une base expérimentale aux travaux théoriques sur le couplage des nucléons dans les noyaux.

CONCLUSIONS

Nous avons tenté de préciser le schéma de désintégration du RaD.

Les raies de conversion du γ de 46,52 KeV ont été étudiées avec un pouvoir séparateur effectif de 0,47 %. Aucun autre γ ne fut décelé.

Un tracé du spectre Auger L correspondant à la réorganisation du noyau du RaE formé fut effectué et nous avons déterminé les différents rendements de fluorescence, Auger et Coster-Kronig.

La caractérisation de la transition β directe a constitué la partie essentielle de ce travail sur le RaD. Nous avons trouvé cette transition intervenir dans 19 ± 4 % des désintégrations. Cette étude fut réalisée grâce à l'application de la méthode des moindres carrés aux comptages effectués en cours de croissance du RaE au sein d'une source de RaD.

L'étude expérimentale du $Ms\ Th_1$ fut beaucoup plus délicate. Nous dûmes extraire ce produit par un solvant organique, le T.B.P., d'un sel de thorium d'ancienne purification et la préparation des sources, qui nécessite entre autres la séparation du $Ms\ Th_2$ de courte période, par extraction par la TTA, a rencontré d'assez sérieuses difficultés.

Il nous fut nécessaire d'étudier le spectre électronique du $Ms\ Th_2$. Nous avons précisé l'intensité et la nature de certaines transitions de basse énergie

dans le noyau $Rd\ Th$ par les rapports $\frac{L_I + L_{II}}{L_{III}}$ ou K/L des raies de conversion. Le

tracé du groupe Auger L fut également détaillé et les différents rendements de fluorescence, Auger et Coster-Kronig furent calculés, moyennant certaines hypothèses.

Des tracés de spectre en cours de croissance du $Ms\ Th_2$ au sein d'une source de $Ms\ Th_1$ et une fois l'équilibre établi nous ont permis de mettre en évidence l'existence de raies de conversion à très basse énergie, attribuables au $Ms\ Th_1$. Elles sont situées à 5,5 ; 6,5 ; 8,5 ; 9,5 et peut-être 12 KeV. L'application de la méthode des moindres carrés à l'étude du fond continu β aboutissant à un diagramme de Kurie a confirmé la complexité du schéma de désintégration. Nous sommes conduits à deux spectres β d'énergie maximum 40 et 24 KeV, le plus énergétique alimentant un bas niveau excité à 10,3 ou 6,7 KeV. Les difficultés expérimentales ne permettent pas de conclure définitivement au sujet du schéma de désintégration et on peut seulement proposer un schéma le plus probable sans exclure complètement d'autres schémas possibles.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) M. RIOU, Thèse 1953
- (2) CURTISS L.F., Phys. Rev. 27, 257, 1926
- (3) RICHARDSON H.O.W. et LEIGH-SCHMITH, Proc. Roy. Soc A 160, 454, 1937
- (4) LEE D.D. et LIBBY W.F., Phys. Rev. 55, 252, 1939
- (5) KIKUCHI S., Proc. Phys. Math. Soc. Japan 4, 143, 1927
- (6) STAHEL E., Z. Physik 68, 1, 1931
- (7) OUANG T.T., SURUGUE J. et TSIEN S.T., C.R. 217, 535, 1943
- (8) CRANBERG L., Phys. Rev. 77, 155, 1950
- (9) TSIEN S.T., C.R. 216, 765, 1943
- (10) TSIEN S.T., C.R. 218, 503, 1944
- (11) FRILLEY, C.R. 218, 505, 1944
- (12) TSIEN S.T. et MARTY, C.R. 221, 177, 1945
- (13) FEATHER, Nucleonics 7, 22, 1949
- (14) FALK-VAIRANT F., TEILLAC J. et VICTOR C., J. Phys. Rad. 13, 143, 1952
- (15) BUTT. D. et BRODIE W.D., Proc. Phys. Soc. 64, 791, 1951
- (16) BAUNERMAN R.C. et CURRAN S.C., Phys. Rev. 85, 134, 1952
- (17) EWANS G.T. et ROSS, Nature 170, 760, 1952
- (18) WU C.S., BOEHM F. et NAGEL E., Phys. Rev. 91, 319, 1953
- (19) GRAY J.A., Nature, Lond. 130, 738, 1932
- (20) BRAMSON S., Z. Physik, 66, 721, 1930
- (21) VON DROSTE, Z. Physik, 84, 17, 1933
- (22) DAMON P.E. et EDWARDS R.R., Phys. Rev. 95, 1698, 1954
- (23) KOBAYASHI Y., J. Phys. Soc. Japan 8, 440, 1953
- (24) BASHILOV A.A., DZHELEPOV B.S. et CHERVINSKAYA L.S., Izv. Akad. Nauk. SSSR 17, 428, 1953
- (25) BRODA E. et FEATHER N., Proc. Roy. Soc. London 190 A, 20, 1947
- (26) FINK R.W., WARREN G.W., ROBINSON B.L. et EDWARDS R.R., Bull. Amer. Phys. Soc. Ser. II, vol. 1, 171, 1957
- (27) WALEN R.J. et BASTIN-SCOFFIER G., J. Phys. et Rad., 20, 589, 1959
- (28) LECOIN M., Mlle PEREY et TEILLAC J., J. Phys. Rad., 10, 33, 1949
- (29) LECOIN M., Mlle PEREY et RIOU M., J. Phys. Rad. 10, 390, 1949
- (30) GOETZE G. et HUSTER E., Z. Naturforschung 13, 9, 796, 1958
- (31) EVANS R.D., The Atomic Nucleus, Mc Graw Hill Book C° Inc. 1955
- (32) NIJGH G.J., WAPSTRA A.H., VAN LIESHOUT R., Nuclear Spectroscopy Tables 1959, North Holland Pub. C° Amsterdam
- (33) MAYER M.G. et JENSEN J.H., Elementary Theory of Nuclear Shell, Wiley New York 1955
- (34) BOHR A. et MOTTELSON B., Dan. Mat. Fys. Medd. 27, n° 16, 1953
- (35) NILSSON G., Dan. Mat. Fys. Medd. 29, n° 16, 1955
- (36) GREEN T.A. et ROSE M.E., Phys. Rev. 110, 105, 1958
- (37) BERGSTROM I. et HILL R.D., Ark. f. Phys. 8, n° 2, 21, 1954

- (38) ROSS M.A.S., COCHRAM A.J., HUGUES J. et FEATHER, Proc. Phys. Soc. 68 A, 612, 1955
- (39) MOUSSA A. et BELLICARD J.B., J. Phys. Rad. 15, 85 A, 1954
- (40) SVARTHOLM N. et SIEGBAHN K., Ark. Mat. Phys. n° 21, 33 A, 1946
- (41) JUILLARD A. (Mlle), Thèse 1961
- (42) BOREL E. et DELTHEIL R., Probabilités et Erreurs, A. Colin, 34
- (43) CURIE P. (Mme), Radio-activité, Hermann et C°, éditeurs, Paris
- (44) ERBACHER O., Zeits f. physik chemie, A 156, 142, 1931
- (45) INSCH G.M., BALFOUR J.G. et CURRAN S.C., Phys. Rev. 85, 805, 1952
- (46) LEWIS G.M., Proc. Phys. Soc. 68 A, 735, 1955
- (47) KINSEY B., Can. J. Research A. 26, 404, 1948
- (48) BOUISSIÈRES G. et FERRADINI C., Analytica Chimica Acta 4, 610-14, 1950
- (49) PLASSMANN E.A. et LAUGER L.M., Phys. Rev. 96, 1593, 1954
- (50) FRILLEY et VALADARES, J. Phys. Rad. 18, 468, 1957
- (51) FRILLEY et VALADARES, J. Phys. Rad. 20, 60, 1959
- (52) NATAF R., J. Phys. Rad 17, 480, 1956
- (53) STANNERS W. et ROSS M.A.S., Proc. Phys. Soc., 69 A, 836, 1956
- (54) KRAUSE I.Y., Z. Physik 152, 586, 1958
- (55) EWAN G.T. et ROSS M.A.S., Nature, 170, 760, 1952
- (56) JAFFE et COHEN, Phys. Rev. 89, 454, 1953
- (57) HUSTER E. Phys. Rev. 92, 1076, 1953
- (58) MOUSSA A. et BELLICARD J.B., C.R. 242, 1156, 1956
- (59) BURDE et COHEN, Phys. Rev. 104, 1085, 1956
- (60) SUJKOWSKI Z. et SLATIS H., Arkiv för Fysik 14, 101, 1958
- (61) STAHEL E., Helv. Phys. Acta 8, 511, 1935
- (62) LAY H., Z. Phys. 91, 533, 1934
- (63) KINSEY B.B., Can. J. Research A 26, 421, 1948
- (64) FRILLEY M, GOKHALE B.G. et VALADARES, C.R. 232, 157, 1951
- (65) RISCH K., Z. Phys. 150, 87, 1958
- (66) FLÜGGE S. et JEKELI W., Z. Naturforsch 10 a, 419, 1955
- (67) GOLDSCHMIDT, Thèse, Paris 1939, Annales de Chimie 13, 88, 1940
- (68) BERNSTRÖM B. et RYDBERG J., Acta Chemica Scandinavica 11, 1173, 1957
- (69) Mc KAY H.A.C., Conf. Intern. sur les usages pacifiques de l'énergie atomique, vol. VII, p 365, 1955
- (70) GERCKE R.H., UCRL 1493, 1951
- (71) HEALY T.V. et Mc KAY H.A.C., Rec. Trac. Chim. 75, 730, 1956
- (72) KATZIN L.I., Conf. Intern. Genève, vol. VII, p 472, 1955
- HYDE E.K. " " " "
- (73) KENNEDY J. et GRIMLEY S.S., AERE CE/R 968
- (74) BURGER L.L., UW 19065
- (75) KRUYT H.R. et TROELSTRA S.A., Kolloid-Beishefte 54, 262, 1943
- (76) LATIMER W.M., The Oxidation States of the elements and their potentials in aqueous solutions, Prentice-Hall, Inc. New York 1952
- (77) GOLDSCHMIDT B., REGNAUT P. et Mme PREVOT, Bull Soc. Chim. 1, 103, 1956
- (78) BJØRNHOLM S., NATHAN O., NIELSEN O.B. et SHELINE R.K., Nature 178, 1110, 1956

- (79) PETERSON, MDDC 1709, E. C. USA
- (80) BRODIE W.D., Proc. Phys. Soc. 67 A, 265, 1954
- (81) NIKITINE B. et POLESSITSKY A., C.R. Acad. Sc. URSS 33, 494, 1941
- (82) BLACK D.H., Proc. Roy. Soc. A 106, 632, 1924
- (83) HAISSINSKY M., C.R. 196, 1788, 1933
- (84) KYLES J., CAMPBELLI C.G. et HENDERSON W.J., Proc. Phys. Soc. 66 A, 519, 1953
- (85) TÖDT F., Z. Physik Chem. 113, 331, 1924
- (86) HAGEMANN F.T., J. Am. Chem. Soc. 72, 768, 1950
- (87) KATZ .J.J. et SEABORG G.T., The Chemistry of the Actinide Elements Mc. Graw-Hill Book C°, Inc 1954
- (88) FRIED S., HAGEMANN F. et ZACHARIASEN W.H., J. Am. Chem. Soc. 72, 771, 1950
- (89) WEIL K. et PETERS K., Brevet USA 726, 1926
- (90) TOMPKINS E.R., J. Am. Chem. Soc. 70, 3520, 1948
- (91) POWER W.H., Nuclear Sc. Abstracts 8, 3301, 396, 1954
- (92) NELSON F. et KRAUS K.A., J. Am. Chem. Soc. 77, 801, 1955
- (93) BJØRNHOLM S., NATHAN O., NIELSEN O.B. et SHELINE R.K., Nuclear Phys. 4, 313, 1957
- (94) ASARO F. et PERLMAN I, Phys. Rev. 99, 37, 1955
- (95) BOX H.C. et KLAIBER G.S., Phys. Rev. 95, 1247, 1954
- (96) DUNVALEY D.C. et SEABORG G.T., Phys. Rev. 87, 165, 1952
- (97) SCHARFF-GOLDHABER G., DER MATEOSIAN E., HARBOTTLE G., Mc KEOWN Phys. Rev. 99, 180, 1955
- (98) ASARO F., STEPHENS F.S. et PERLMAN I., Phys. Rev. 92, 1495, 1953 et 107, 1091, 1957
- (99) ROSENBLUM S., VALADARES M. et GUILLOT M., J. Phys. Rad. 15, 129, 1954
- (100) NALL J.C., BAIRD Q.L. et HAYNES S.K., Phys. Rev. 118, 1278, 1960
- (101) STEPHENSON R.J., Phys. Rev. 51, 637, 1937

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
INTRODUCTION - Historique	1
CHAPITRE I	
GENERALITES	
a) Stabilité des isobares	7
b) Modèle en couches et modèle collectif	10
c) Conversion interne et réarrangement électronique	12
CHAPITRE II	
APPAREILLAGE ET TECHNIQUES	
I) Le spectromètre	17
II) Les sources	20
III) Etude de la croissance d'un dérivé par la méthode des moindres carrés	21
CHAPITRE III	
RADIUM D	
I) Préparation des sources	26
II) Raies de conversion du γ de 46,52 KeV	29
III) Transition directe de 61 KeV	35
IV) Auger L	41
CHAPITRE IV	
MESOTHORIUM 1	
I) Extraction à partir d'un nitrate de thorium	49
II) Préparation des sources de $Ms Th_1$ et de $Ms Th_2$	55
III) Etude du $Ms Th_2$	60
- raies de conversion	60
- Auger L	66
IV) Spectre global en croissance et à l'équilibre	73
V) Diagramme de Kurie	77
VI) Schémas de désintégration proposés pour le $Ms Th_1$	80
CONCLUSIONS	87

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

ANALYSE PAR ACTIVATION

Vu :
Les Membres du Jury,

MM. MOUSSA
PÂRIS
SARAZIN

Vu et approuvé :
Le Doyen de la
Faculté des Sciences

Pour le Doyen
L'Assesseur

Jean BRACONNIER.

Vu et accordé le permis d'imprimer :

Lyon, le 8 Septembre 1961

Le Recteur,
Président du Conseil de l'Université :

P. LOUIS.

LMD
99, Av. de Saxe, LYON
Dépôt légal - Octobre 1961 -

